



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

643₁

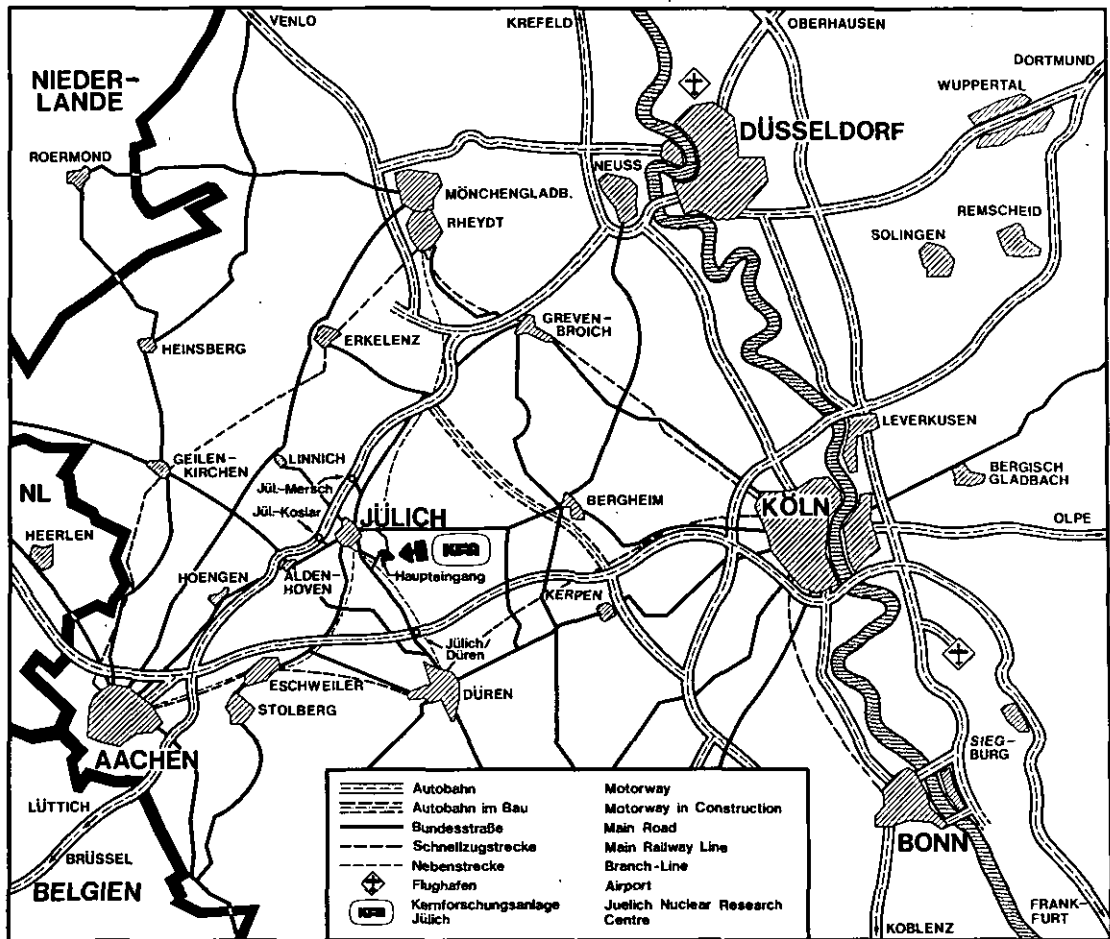
Chemie der Entsorgung von Kernkraftwerken

Vorträge eines Fortbildungsseminars
für Chemie- und Biologielehrer,
veranstaltet vom Institut für Chemie
der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
in Zusammenarbeit mit dem Landesinstitut
für schulpädagogische Bildung, Düsseldorf

Redaktion: P.F. Sauermann

Jül-Conf-33
Dezember 1979
ISSN 0344-5798

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Jül-Conf-33

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Druckfehlerberichtigung zum Bericht Jül-Conf-33: „Chemie der Entsorgung von Kernkraftwerken“

Seite 3, Inhaltsverzeichnis:	Titel des dritten Referates: „Zurückhaltung der flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte“
Seite 8, rechte Spalte, Zeile 9:	zwischen „wobei“ und „die“ ist einzufügen: „bei letzterem“
Seite 16, Bild 4:	statt „Auflösung in 3 M HOA ₃ “ muß es heißen: „Auflösung in 6 M HNO ₃ “
Seite 19, rechte Spalte, Zeile 9:	statt „reduziertem“ muß es heißen: „reduzierendem“
Seite 29, linke Spalte, Zeile 24:	statt „Einwegventil“ muß es heißen: „Einfrierventil“
Seite 33, linke Spalte, Zeile 3:	Der Punkt zwischen „Teilprojekt“ und der Zahl 5 entfällt
Seite 33, rechte Spalte, Zeile 3:	statt „führten“ muß es heißen: „führen“
Zeile 4:	statt „müßten“ muß es heißen : „müssen“
drittletzte Zeile:	statt „die“ muß es heißen: „ca.“
Seite 35, rechte Spalte, Zeile 28:	statt „ergibt“ muß es heißen „ergeben“
Seite 37, rechte Spalte, Zeile 17:	statt „Parameter“ muß es heißen : „Parametern“
Zeile 28:	statt „eines Glases“ muß es heißen: „des Glases“
Zeile 32:	statt „Flüssigkeitseigenschaften“ muß es heißen: „Flüssigkeitseigenschaften“
Seite 38, rechte Spalte, Zeile 2:	statt „führte“ muß es heißen: „führen würde“.
Seite 49, Tabelle 9:	statt „Tritium (H-3) $2 \cdot 10^6$ “ muß es heißen: „Tritium (H-3) $2 \cdot 10^5$ “

Chemie der Entsorgung von Kernkraftwerken

Vorträge eines Fortbildungsseminars
für Chemie- und Biologielehrer,
veranstaltet vom Institut für Chemie
der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
in Zusammenarbeit mit dem Landesinstitut
für schulpädagogische Bildung, Düsseldorf

S. Halaszovich, E. Merz, R. Odoj,
H. Ringel, H. Barnert-Wierner und E. Zimmer,
P.F. Sauermann, U. Wenzel

Redaktion: P.F. Sauermann

Inhalt

P.F. Sauermann: Vorwort	5	3. Verfestigung radioaktiver Spaltprodukte	28
E. Merz:		3.1 Anforderung an die Verfestigungsprodukte	28
Die Entsorgung der Kernkraftwerke	7	3.2 Verfahren zur Verfestigung von Spaltprodukten	28
1. Einleitung	7	4. Bewertung der verschiedenen Verfestigungsverfahren	30
2. Gründe für die Wiederaufarbeitung	8	5. Stand der Entwicklung in der Bundesrepublik Deutschland	31
3. Verfahrensbeschreibung der Wiederaufarbeitung ..	9	6. Literatur	31
4. Verfahrensbeschreibung der Abfallbehandlung	10	R. Odoj:	
5. Das deutsche Entsorgungskonzept	10	Eigenschaften und Endlagerung der verfestigten Abfallprodukte	33
6. Entsorgungszentrum Gorleben	11	1. Abfallarten und -mengen	33
7. Schlußbemerkung	12	1.1 Niedrigaktiver Abfall	33
8. Literatur	12	1.2 Mittelaktiver Abfall	33
U. Wenzel:		1.3 Hochaktiver Abfall	33
Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen	13	2. Endlager	34
1. Einleitung	13	3. Eigenschaften der verfestigten Abfallprodukte	37
2. Inventar ausgedienter Kernbrennelemente	13	3.1 Produkt-Containment	37
2.1 Kernspaltung	13	3.2 Abfallendprodukt (Glas)	37
2.2 Brutprozeß	13	3.3 Andere Verfestigungsprodukte	38
2.3 Transmutation	15	4. Schlußbemerkung	39
3. Der Wiederaufarbeitungsprozeß	15	5. Literatur	39
3.1 Purex-Prozeß	16	P.F. Sauermann:	
3.2 Thorex-Prozeß	16	Strahlenschutz bei der Entsorgung der Kernkraftwerke	41
3.3 Separatoren	18	1. Einleitung	41
4. Spezielle Probleme der Wiederaufarbeitung	19	2. Berufliche Strahlenexposition	41
5. Zusammenfassung	19	2.1 Einige Grundlagen des Strahlenschutzes	41
6. Literatur	19	2.1.1 Abschirmung ionisierender Strahlung	42
H. Ringel, H. Barnert-Wiemer und E. Zimmer:		2.1.2 Rückhaltung von Spaltprodukten	43
Zurückhaltung der flüssigen radioaktiven Spaltprodukte	21	2.2 Transport bestrahlter Brennelemente	43
1. Einleitung	21	2.3 Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente	44
2. Abgasbehandlung im Kernkraftwerk	21	2.4 Wiederaufarbeitung und Abfallkonditionierung	46
3. Rückhaltung der radioaktiven Schadstoffe in der Wiederaufarbeitungsanlage	22	2.4.1 Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe	46
3.1 Allgemeines	22	2.4.2 Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River	46
3.2 Tritium (H-3)	23	2.5 Endlagerung	47
3.3 Kohlenstoff-14	23	3. Strahlenexposition der Umwelt	47
3.4 Krypton-85	23	3.1 Berechnung der Strahlenexposition	47
3.5 Jod-129	24	3.2 Transport bestrahlter Brennelemente	48
3.6 α - und β -Aerosole	24	3.3 Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente	48
3.7 Aufbau einer Anlage zur Rückhaltung von radioaktiven Schadstoffen aus dem Auflöserabgas	24	3.4 Wiederaufarbeitung und Abfallkonditionierung	48
4. Zusammenfassung	25	3.4.1 Erfahrungen verschiedener Wiederaufarbeitungsanlagen	48
5. Literatur	25	3.4.2 Nukleares Entsorgungszentrum (NEZ) für die Bundesrepublik Deutschland	49
S. Halaszovich:		3.5 Endlagerung	49
Verfestigung radioaktiver Spaltprodukte	27	3.6 Globale Auswirkungen der Entsorgung der Kernkraftwerke	50
1. Einleitung	27	4. Störfälle	50
2. Lagerung radioaktiver Spaltprodukte in flüssiger Form	27	4.1 Erfahrungen mit Störfällen in Wiederaufarbeitungsanlagen	50
		4.2 Störfallvorsorge	51
		5. Schlußbetrachtung	51
		6. Literatur	52

Vorwort

Im Rahmen der alljährlich stattfindenden Fortbildungsseminare für Chemie- und Biologielehrer an weiterbildenden Schulen werden regelmäßig auch Themen aus dem Bereich der Energieforschung behandelt, wobei die Kernenergie einen Schwerpunkt bildet.

Im Zusammenhang mit der Planung des integrierten Entsorgungszentrums für die Bundesrepublik Deutschland verlagerte sich die Diskussion um das Für und Wider der Kernenergie zunehmend auf den Bereich der Entsorgung der Kernkraftwerke.

Aussagen wie: „Nirgendwo auf der Welt haben Wiederaufarbeitungsanlagen technisch einwandfrei funktioniert“ (Robert Jungk in „Der Atomstaat“), oder „Die chemischen Verfahren der Wiederaufarbeitung von bestrahlten Brennelementen aus Leichtwasserreaktoren sind völlig unausgereift“, oder „Die Strahlenbelastung des Personals und der Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen ist nicht zu verantworten“ haben zu einer tiefgreifenden Verunsicherung der Bevölkerung und insbesondere auch bei der Jugend zu einem zunehmenden Widerstand gegen die Nutzung der Kernenergie geführt.

Daher, und in der Einsicht, daß insbesondere die Fachlehrer für Chemie und Biologie zu einer Versachlichung der Diskussion um die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen beitragen können, wurden in das Programm der 9. Fortbildungstagung für Chemie- und Biologielehrer, welche in der Zeit vom 13. bis 16. Februar 1979 stattfand, fünf Beiträge aufgenommen, welche die Chemie der Wiederaufarbeitung zum Inhalt haben. Ein sechster Beitrag behandelt die bei der Wiederaufarbeitung zu lösenden Strahlenschutzprobleme.

Die Niederschriften dieser sechs Vorträge dienten als Vorlage für die Beiträge zu dem vorliegenden Bericht, wobei versucht wurde, die teilweise recht komplexen Sachverhalte auch für Laien verständlich darzustellen. Wo es möglich und sachdienlich war, wurden auch neuere Ergebnisse in den Bericht aufgenommen.

Jülich, im Dezember 1979

Paul F. Sauermann

Die Entsorgung der Kernkraftwerke

E. Merz

Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Kernkraftwerke zur Erzeugung elektrischen Stroms oder von Wärmeenergie benötigen – nicht anders als es bei fossil befeuerten Kraftwerken der Fall ist – zu ihrem Betrieb einen geeigneten Brennstoff. Er kommt in Form des Elementes Uran in der Natur in großer Menge an vielen Stellen der Erde vor und bildet die Grundlage der Versorgung heutiger Kernkraftwerke. Die wichtigsten Stationen des sog. nuklearen Brennstoffkreislaufes sind in Bild 1 dargestellt.

Die Technologie der Versorgung der Kernkraftwerke mit den Teilschritten

- Urangewinnung
- Erzaufbereitung
- UF_6 -Herstellung
- Urananreicherung
- Brennelementherstellung

hat in der Bundesrepublik Deutschland einen zufriedenstellenden industriellen Reifegrad erreicht.

Bei der Versorgung mit Natururan sind wir weitgehend vom Ausland abhängig. Die deutsche Industrie ist auf den Gebieten der Prospektion, Exploration, des Bergbaus, der Erzaufberei-

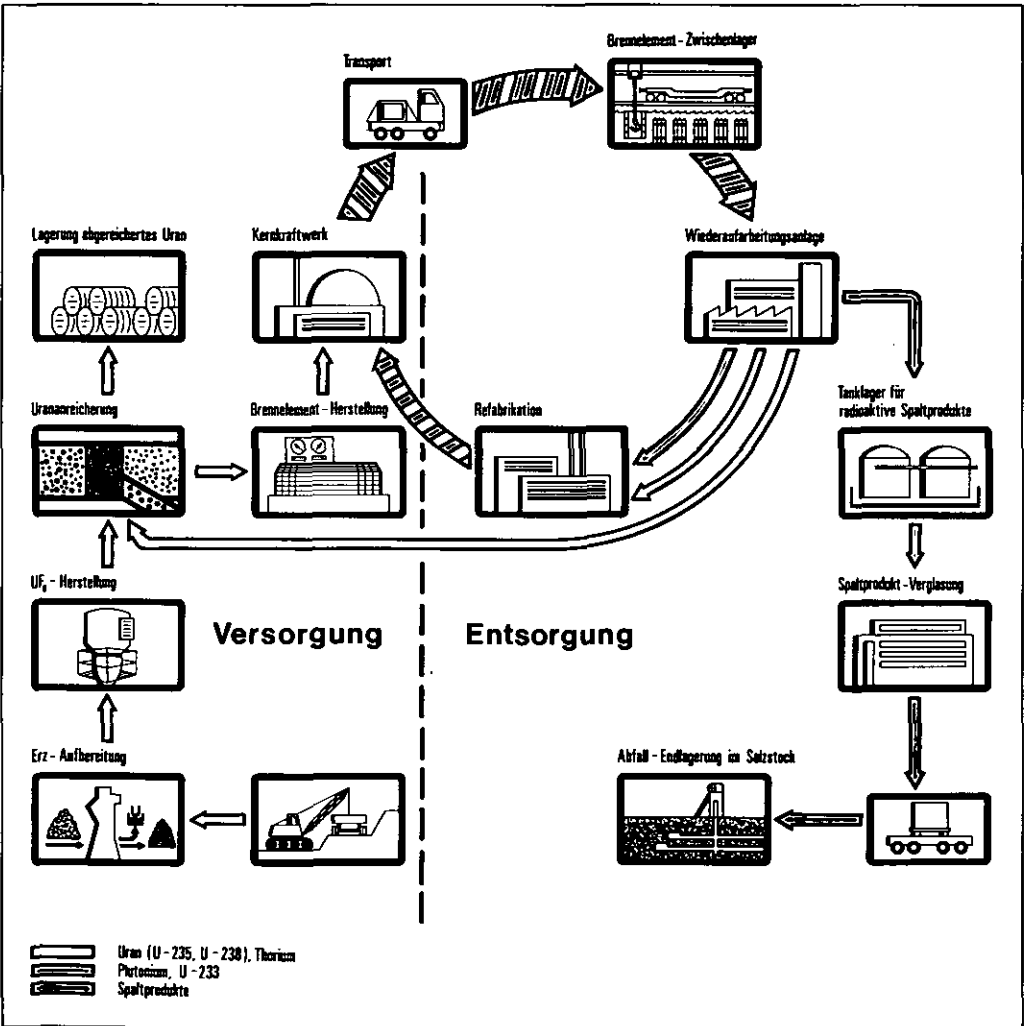


Bild 1:
Der nukleare
Brennstoffkreislauf

tung und Reindarstellung der Brennstoffe international durch Kooperationsverträge bzw. Beteiligungen im Geschäft und konkurrenzfähig.

In der Urananreicherung hat die deutsche Industrie inzwischen ebenfalls Beachtliches geleistet. Das Zentrifugenverfahren, anfänglich von den Atommächten belächelt, wird sich gegenüber der etablierten Gasdiffusion durchsetzen und sie am Ende gar auf die zweite Stelle abdrängen. Es ist notwendig und wünschenswert, daß die geplante Anreicherungsanlage in Gronau am Niederrhein so schnell wie möglich gebaut wird, um die Eigenversorgung mit schwach angereichertem Uran für die marktbeherrschenden Leichtwasserreaktoren sicherzustellen. Der Baubeginn ist für das Jahr 1981 vorgesehen. Die Kapazität der ersten Ausbaustufe wird 1000 Jahrestonnen betragen. Sie soll später – je nach Bedarf – verdoppelt bis verdreifacht werden. Es handelt sich um ein privatwirtschaftliches Unternehmen der Firma URANIT, die Partner des trilateralen deutsch-britisch-niederländischen Firmenkonsortiums URENCO ist. Zur Zeit werden bereits zwei Prototypen nach dem Zentrifugenverfahren mit je 200 Tonnen Jahreskapazität in Almelo/Holland und in Capenhurst/England betrieben.

Auf dem Gebiet der Brennelementfertigung gehört die deutsche Industrie zu den führenden Branchenvertretern. Die Produktionsqualität entspricht den höchsten Anforderungen. Notwendige Kapazitäten lassen sich rechtzeitig durch Zubau bereitstellen. Die deutsche Siemens/NUKEM-Tochter RBU in Hanau erhält in diesen Tagen durch den Neubau der amerikanischen EXXON-Brennelementfabrik in Lingen an der Ems Konkurrenz auf dem europäischen Markt.

Weit weniger günstig sieht es im zweiten Abschnitt des Brennstoffkreislaufes, der Entsorgung aus. Hier besteht ein beträchtlicher Nachholbedarf, und zwar weltweit. In den vergangenen 40 Jahren, die inzwischen seit dem Bau des ersten Kernspaltungsreaktors verflissen sind, galt das Augenmerk fast ausschließlich den Kernreaktoren und der Kernbrennstoffversorgung. Das mit Zeitverschiebung sich auftuende Problem der Entsorgung wurde wegen aktuellerer größerer Sorgen verdrängt nach dem Motto: „Kommt Zeit, kommt Rat“. Es ist inzwischen spät geworden, die Zeit drängt und fordert umfangreiche Maßnahmen, aber es ist noch nicht zu spät. Es steht jedoch außer Frage, daß sich das Problem der Entsorgung in der Bundesrepublik Deutschland rechtzeitig, sauber und sicher lösen läßt. Der neudeutsche Begriff Entsorgung faßt die Teilschritte

- Transporte
- Zwischenlagerung ausgedienter Brennelemente
- Wiederaufarbeitung
- Refabrikation und
- Behandlung radioaktiver Abfälle einschließlich der Endlagerung

zusammen.

Entsorgung drückt im wörtlichen Sinne die Befreiung von einer Last aus. Gemeint ist die Problematik der radioaktiven Abfälle mit ihrem besonderen Gefährdungspotential. Abgebrannte Brennelemente, die nach ungefähr 3jähriger Betriebszeit dem Reaktor entnommen werden, stellen an sich noch keinen radioaktiven Abfall dar, weder im technischen noch juristischen Sinne. Sie enthalten neben den hochradioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukten, dem eigentlichen Abfall, noch erhebliche Wertstoffmengen. Dazu gehören nicht umgesetztes spaltbares U-235, gebrütetes Pu-239 sowie große Mengen an unverbrauchtem Brutstoff U-238.

Erst nach einer chemischen Trennung von Wert- und Abfallstoffen, der sog. Wiederaufarbeitung, erhält man den radioaktiven Abfall, der endgültig beseitigt werden muß. Die Wertstoffe, d.h. Spalt- und Brutstoff, werden in den Kreislauf zurückge-

führt; man spricht deshalb von einem geschlossenen Brennstoffkreislauf.

Ausgelöst durch die amerikanische Atompolitik der Carter-Administration, deren Hauptziel die Verhinderung eines Spaltstoffmißbrauchs für kriegerische Zwecke ist, wurde ein zweites Entsorgungskonzept in die Diskussion eingebracht; der sog. Wegwerfzyklus. Diese Option wird auch als offener Brennstoffkreislauf bezeichnet. Beide Konzepte haben ihre Vor- und Nachteile, wobei die Nachteile klar überwiegen.

2. Gründe für die Wiederaufarbeitung

Gerade in der jüngsten Vergangenheit hat sich die Wiederaufarbeitung ausgedienter Brennelemente als einer der heftigsten Streitpunkte in der Diskussion um die friedliche Nutzung der Kernenergie herausgestellt. Diese Entwicklung kam für die Fachwelt in gewisser Weise überraschend, denn die Wiederaufarbeitung gibt es in den Atomwaffenstaaten seit über 35 Jahren. Früher diente sie rein militärischen Zwecken, und zwar der Gewinnung von waffenfähigem Plutonium. Mit der Kommerzialisierung der Kernenergie und dem damit verbundenen verbreiteten Einsatz von Kernkraftwerken änderten sich die Ziele der Wiederaufarbeitung:

- a) Nur durch die Rückführung des nicht verbrauchten Spaltstoffs Uran und des im Reaktor gebrüteten neuen Spaltstoffs, Pu-239 oder U-233, ist es möglich, die natürlichen Uran- und Thoriumvorräte dieser Erde sinnvoll zu nutzen. Ein Verzicht auf Wiederaufarbeitung hieße, wertvolle Rohstoffe zu vergeuden.
- b) Mit der Wiederaufarbeitung und Rückführung der gebrüteten Spaltstoffe in fortgeschrittenen Reaktoren erreicht man die risikoärmste Endbeseitigung aller zwangsläufig anfallenden radioaktiven Stoffe; seien es nun die Spaltprodukte selbst oder die sog. Aktinidenelemente, deren bekanntester Vertreter das Plutonium ist.

Die Zweckmäßigkeit der Wiederaufarbeitung wird in letzter Zeit aus unterschiedlichen Gründen in Frage gestellt. Ein Hauptargument kommt aus dem politischen Lager: Es geht um die Gefahr der unkontrollierten Verbreitung von Spaltmaterial zu militärischen bzw. terroristischen Zwecken, das Gespenst von einer gefährlichen Plutoniumwirtschaft wird kolportiert.

Eine andere Stoßrichtung zweifelt die Wirtschaftlichkeit an, und schließlich lehnen Kernenergiegegner eine Brennstoffkreislaufttechnologie aus prinzipiellen Gründen gänzlich ab. Selbst für den Unbefangenen sind die stark emotional vorgetragenen Argumente pro und contra kaum noch zu durchschauen. Eine zwingende Notwendigkeit für eine sofortige Wiederaufarbeitung der in heutigen Leichtwasserreaktoren anfallenden Brennelemente besteht in der Tat nicht, weder von der wirtschaftlichen Seite her gesehen noch aus Gründen der Sicherheitstechnik.

Eine Zwischenlagerung der verbrauchten Brennelemente über Zeiträume bis zu 20 Jahren hinweg ist gefahrlos möglich; unter den heute herrschenden Randbedingungen sogar sinnvoll, bevor sie einer Wiederaufarbeitung zugeführt werden. Selbstverständlich ließe sich auch eine spätere Endbeseitigung der zwischengelagerten Brennelemente ohne Wiederaufarbeitung realisieren. Man müßte dazu die Brennelemente allerdings nochmals mit einer zusätzlichen Sicherheitsbarriere versehen, bevor man sie im tiefen geologischen Untergrund vergräbt. Möglichkeiten dafür gibt es verschiedene. Allerdings bliebe dann das Argument der Rohstoffvergeudung. Deshalb sollte dieser Weg nicht ohne Not eingeschlagen werden.

Aus volkswirtschaftlicher Verantwortung heraus bedürfen die Wiederaufarbeitung und radioaktive Abfallbehandlung einer zielstrebigen Realisierung. Dies kann ohne Hast und Zug-

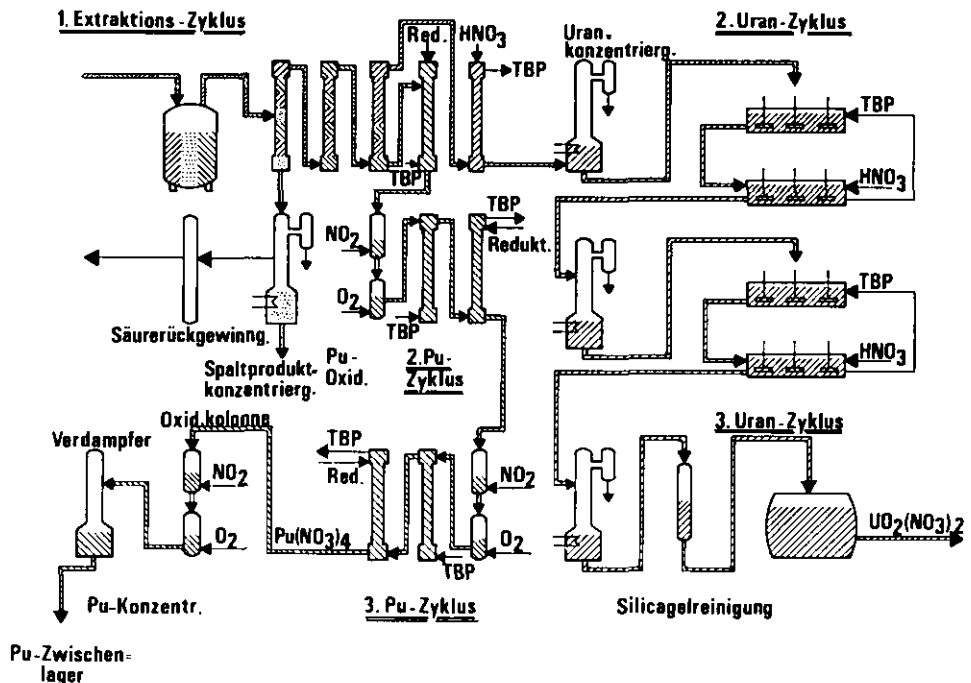
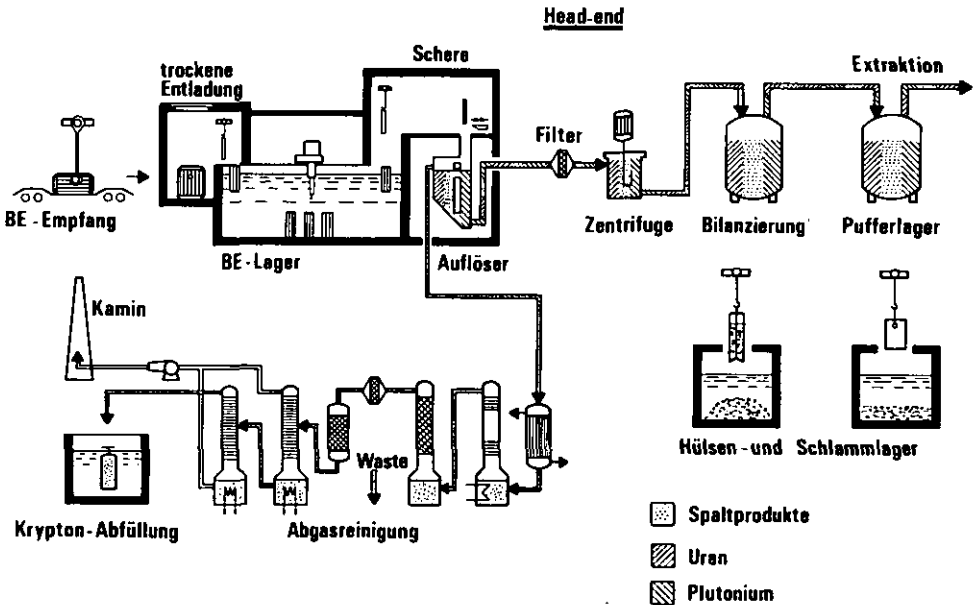


Bild 2:
Schematische Darstellung des Wiederaufarbeitungsprozesses

zwang erfolgen, da die Rückführung des zurückgewonnenen Spalt- und Brutstoffs noch keine zwingende wirtschaftliche Notwendigkeit darstellt. Es besteht ausreichend Zeit, die besten Lösungen zu entwickeln. Für die Bundesrepublik verhängnisvoll wäre es allerdings, heute den zügigen Ausbau der Wiederaufarbeitungstechnologie aufzuschieben oder gar ganz zu stoppen, denn jenseits der Jahrhundertwende wird die Kernenergie mit einem geschlossenen Brennstoffkreislauf mit größter Dinglichkeit benötigt. Dann allerdings muß eine ausgereifte industrielle Technik verfügbar sein, die für die menschliche Umwelt ungefährlich und wirtschaftlich attraktiv ist.

3. Verfahrensbeschreibung der Wiederaufarbeitung

Als Kern des Wiederaufbereitungsverfahrens für LWR-Brennelemente hat sich die Lösungsmittelextraktion nach dem PUREX-Verfahren, einem sog. wässrigen Verfahren, welches

bei niedrigen Temperaturen und Normaldruck arbeitet, durchgesetzt. Das schematische Fließbild zeigt Bild 2.

Die von den Kernkraftwerken in schweren Transportbehältern angelieferten Brennelemente werden zunächst in großen Wasserbecken zwischengelagert. Während dieser Zeit zerfallen die kurzlebigen Isotope, so z.B. das für den Umweltschutz besonders bedeutsame Jod-131. Frühestens ein Jahr nach der Entladung aus dem Reaktor werden sie dann der eigentlichen Wiederaufarbeitung zugeführt.

Die Brennelemente bestehen aus zahlreichen Brennstäben, die durch Kopf- und Fußstücke zusammengehalten werden. In den Brennstäben befindet sich der eigentliche Brennstoff, Uran- und Plutoniumoxid in Tablettenform, dicht eingeschlossen in Hüllrohre aus einer Zirkoniumlegierung, dem sog. Zircaloy.

Die Wiederaufarbeitung beginnt mit der mechanischen Zerlegung. Abgeschirmt durch dicke Betonmauern werden zunächst die Kopf- und Fußstücke abgesägt. Dann werden die Brennstäbe einzeln oder in Bündeln in einige Zentimeter lange

Stücke zerhackt. Dieser Vorgang kann durch dicke Bleifenster beobachtet werden. Alle folgenden Verfahrensschritte werden nicht mehr direkt beobachtet, sondern über zahlreiche Anzeige- und Registriergeräte verfolgt.

Die Brennstababschnitte fallen direkt aus der Zerkleinerungsmaschine in einen Korb, der sich in einem Kessel mit siedender Salpetersäure befindet. Hier lösen sich der Brennstoff und die Spaltprodukte aus den Hüllrohrabschnitten heraus. Dabei werden die gasförmigen und leicht flüchtigen Spaltprodukte frei und gelangen ins Abgas. Hierzu gehören insbesondere das Jod mit dem langlebigen Isotop J-129 und die Edelgase Krypton und Xenon, mit dem Kr-85 als wichtigstem radioaktiven Isotop. Außerdem enthält das Abgas neben weiteren radioaktiven Isotopen, z.B. C-14, vor allem nichtradioaktive aber giftige Stickoxide, Säuredämpfe und tritiumhaltigen Wasserdampf. Aus letzteren wird Salpetersäure zurückgewonnen, die dann wieder zur Auflösung von neuem Brennstoff eingesetzt wird. Die im Abgas verbleibenden Verunreinigungen werden in einer hochwirksamen Abgasstrecke abgetrennt, bevor das saubere Abgas über den Schornstein abgegeben wird.

Die ausgelaugten Hüllrohrabschnitte werden mit dem Korb aus der Säure herausgehoben, abgespült und der Abfallkonditionierung zugeführt. Die Brennstofflösung, die Uran, Plutonium und die Spaltprodukte in gelöster Form enthält, wird nun durch Filtration geklärt und durch einen weiteren Behandlungsschritt auf die gewünschte Urankonzentration bei der nachfolgenden Solventextraktion eingestellt.

Bevor die Brennstoff-Speiselösung weiteren Behandlungsschritten unterworfen wird, findet eine genaue Bilanzierung der Spaltstoffe Uran und Plutonium statt. Jetzt beginnt die eigentliche chemische Trennung durch Solventextraktion, an deren Ende drei Hauptfraktionen anfallen: die Uranklösung, die Plutoniumlösung und die hochradioaktive Spaltproduktlösung.

Die Solventextraktion beruht auf der unterschiedlichen Verteilung der verschiedenen Stoffe der Ausgangslösung zwischen der wässrigen Phase und einer mit dieser nicht mischbaren organischen Phase. Es handelt sich um Tri-n-butylphosphat in einem paraffinischen Verdünnungsmittel (Kerosin).

Beim PUREX-Prozeß werden Uran und Plutonium in der ersten Kolonne durch Übergang in die organische Phase von den Spaltprodukten getrennt und anschließend in die wässrige Phase zurückextrahiert. Nach Zusatz eines Reduktionsmittels werden Uran und Plutonium getrennt, wobei Plutonium in der wässrigen Phase verbleibt und nur Uran extrahiert wird. In der letzten Kolonne schließlich wird Uran wieder in die wässrige Phase rückextrahiert.

Nach einer weiteren Feinreinigung können Uran und Plutonium als Wertstoffe wieder zu neuen Brennelementen verarbeitet werden.

4. Verfahrensbeschreibung der radioaktiven Abfallbehandlung

Bei der Wiederaufarbeitung fallen an verschiedenen Stellen des Prozesses verschiedenartige Abfälle an, wie sie schematisch in Bild 3 dargestellt sind.

Die Vorbehandlung der Abfälle besteht im wesentlichen aus einer Verringerung des Volumens bei flüssigen Abfällen und einer geeigneten Fixierung und Verpackung der festen Abfälle. Für jede Abfallsorte hat man genügend Zwischenlagerkapazität vorzusehen. Den volumenmäßig größten Anteil machen die mittel- und schwachaktiven Abfälle mit etwa 95 % aus. Der Volumenanteil der verfestigten hochradioaktiven Spaltprodukte beträgt ungefähr 4 m³ jährlich für ein 1 000 MW_e-Kraftwerk. Sie enthalten jedoch rund 98 % aller gebildeten Radioaktivität.

Für die hochradioaktiven Spaltprodukte ist eine Verglasung, für alle übrigen Abfallsorten eine Fixierung mit Zement vorgesehen.

5. Das deutsche Entsorgungskonzept

Die deutsche Industrie hat sich in der Vergangenheit keinesfalls so schlecht und verantwortungslos verhalten wie manche Kritiker lautstark verkünden. Zuerst hat sie sich mit finanzieller

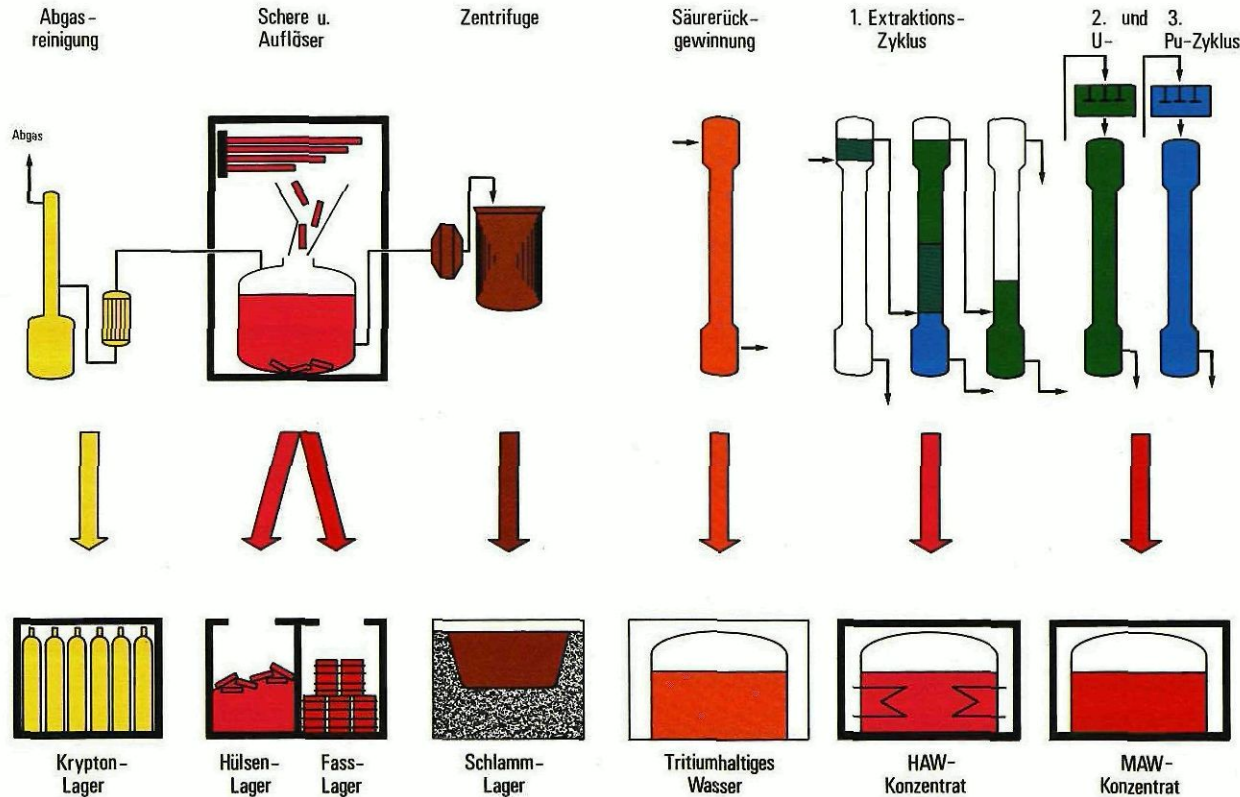


Bild 3: Verschiedene Abfallsorten bei der Wiederaufarbeitung

Unterstützung der Bundesregierung maßgeblich am Betrieb der EUROCHEMIC-Anlage in Mol/Belgien beteiligt. Dann folgte die Errichtung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, WAK. Sie hat sich als eine der besten Investitionen staatlicher Kernenergieförderung erwiesen. Ohne sie wäre es nie gelungen, auf diesem schwierigen Gebiet selbständig zu werden. Die deutsche Industrie benötigt dringend die dort gemachten und in Zukunft noch herauspringenden Erfahrungen in der Technik der Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung. Die vielgepriesene internationale Kooperation in Ehren, aber die deutschen EVU's haben erfahren müssen, daß der Einkauf von KNOW-HOW teuer ist. Die Ausgaben in Karlsruhe haben sich deshalb bereits amortisiert.

Kein Ruhmesblatt hingegen ist das jahrelange Hin und Her einiger deutscher Chemiefirmen um den Bau einer großen Wiederaufarbeitungsanlage. Ebenfalls unruhmlich ist das unentschlossene Abseitsstehen der EVU's über lange Zeit hinweg. Die seinerzeitige Gründung der United Reprocessors Gesellschaft war gut gemeint, sie hat sich jedoch als eine wenig brauchbare Lösung herausgestellt. Die Sache wurde erst in vernünftige Bahnen gelenkt, als die Bundesregierung vor einigen Jahren ihr Entsorgungskonzept entwickelte und die 12 wichtigsten EVU's sich zur Deutschen Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen formierten. Das Entsorgungskonzept geht von folgenden Überlegungen aus:

1. Aufarbeitung, Brennstoffrückführung, Abfallbehandlung und Abfallendlagerung werden räumlich in einem geschlossenen Entsorgungszentrum zusammengefaßt, um so die Transportvorgänge zu minimieren und den wirkungsvollsten Objektschutz zu garantieren.
2. Mittel- und schwachradioaktive Abfälle werden sofort konditioniert und unmittelbar am Standort im geologischen Untergrund endgelagert. Es darf als gesichert gelten, daß der Salzstock Gorleben für diese beiden Abfallsorten auf jeden Fall geeignet ist.
3. Die hochradioaktiven Spaltproduktabfälle werden zunächst in flüssiger Form, wie sie aus der Wiederaufarbeitungsanlage anfallen, in zwangsgekühlten mehrfach gesicherten Lagertanks bis maximal fünf Jahre gelagert. Dann erfolgen ihre Verfestigung und Einbindung in auslaugungsresistente Glaskörper. Die nochmals in korrosionsfeste Metallbehälter gasdicht eingeschlossenen Glasblöcke werden je nach Zweckmäßigkeit für eine Reihe von Jahren oberirdisch zwischengelagert. Erst nach der abschließenden erfolgreichen Erprobung des Endlagerkonzeptes in Salzkavernen sowie der endgültigen Eignungsprüfung des Salzstockes Gorleben für diesen Zweck gelangen die verglasten Produkte an ihre Endlagerstätte. Realistisch betrachtet, liegt dieser Zeitpunkt jenseits der Jahrhundertwende.

Es besteht absolut keine zwingende Notwendigkeit, daß die Endlagerung der verfestigten hochradioaktiven Spaltproduktabfälle direkt am Standort Gorleben geschehen muß. In diesem Punkt haben die Erfinder des Entsorgungszentrums einem übertriebenen Perfektionismus gehuldigt, der einer sachlichen Diskussion bisher mehr geschadet als genutzt hat.

6. Entsorgungszentrum Gorleben

Das Entsorgungszentrum wird ein Areal von etwa 12 km² umfassen (3x4 km Ausdehnung). Zur Errichtung und zum Betrieb bedarf es eines atomrechtlichen Genehmigungsverfahrens nach § 7 AtG. Die Aufgaben und Funktionen sind in sieben Teilprojekte gegliedert:

Teilprojekt 1: Brennelementlager

Die ausgedienten Brennelemente gelangen in abgeschirmten Behältern von den Kernkraftwerken in das Entsorgungszentrum.

Die hohe Eigenradioaktivität schützt das Spaltmaterial vor Entwendung. Die Brennelemente werden in Wasserbäcken je nach Bedarf zwischengelagert. Die geplante Lagerkapazität liegt bei 3000 t.

Da dieses zentrale Eingangslager nicht vorab am Standort Gorleben gebaut werden kann, ist jetzt der Sachzwang entstanden, ein Zwischenlager für ausgediente Brennelemente an einem anderen Standort schleunigst zu errichten. Als solcher ist inzwischen Ahaus in der Nähe von Münster nach § 6 AtG beantragt. Antragsteller sind DWK und STEAG. Die vorgesehene Lagerkapazität beträgt 1500 t UO₂ mit einer jährlichen Ein- und Ausladungsleistung von 700 t. Die Inbetriebnahme des Lagers muß im Jahre 1986 möglich sein, denn die mit der französischen Gesellschaft COGEMA abgeschlossenen Verträge laufen zunächst nur bis 1985. Es besteht eine gewisse Aussicht, weiterführende Verträge bis 1989 unterzubringen.

Teilprojekt 2: Wiederaufarbeitung/Abfallbehandlung

Die Wiederaufarbeitung erfolgt in einem geschlossenen, gegen äußere und innere Einwirkungen gesicherten Anlagenkomplex nach dem PUREX-Prinzip. Mit Hilfe chemischer Verfahren erfolgt dabei eine Trennung in Uran, Plutonium und Spaltprodukte. Uran und Plutonium werden zur Weiterverarbeitung an die Uran- bzw. Plutoniumverarbeitungsanlagen (TP 3 und TP 4) abgegeben. Die verschiedenen radioaktiven Abfallströme werden in einer Reihe von Behandlungsschritten in eine zur Zwischen- bzw. Endlagerung geeignete Form überführt. Die Jahreskapazität beträgt 1400 t Uran, bzw. 5 t U/Tag und 20 t Pu/Jahr.

Teilprojekt 3: Uranverarbeitung

Der Uranproduktstrom wird in einer eigenen Anlage in neue Brennelemente verarbeitet. Ein gewisser Teilstrom geht nach Herstellung von UF₆ in die Anreicherungsanlage.

Teilprojekt 4: Plutonium-Brennelementherstellung

Aus dem flüssigen Plutoniumnitratstrom werden in einer besonders ausgestatteten Verarbeitungsanlage Pu-haltige Brennelemente hergestellt. Das Plutonium kommt nur als Mischoxid zum Einsatz, wodurch das Proliferationsrisiko vermindert wird. Der sicherste Aufbewahrungsort für Plutonium ist sein unverzüglicher Wiedereinsatz im Reaktor als Kernbrennstoff.

Teilprojekt 5: Abfallendbehandlung

Dieser Komplex befaßt sich vor allem mit der Verglasung der hochradioaktiven Spaltproduktlösungen. Weitere Abfallsorten aus den Zwischenlagern des TP2, die hier endkonditioniert werden, sind die Brennelementhüllen, die Zentrifugenschlämme, die tritiumhaltigen Abwässer sowie die MAW-Konzentrate. Vorgesehenes Bindemittel ist hierbei vorzugsweise Zement.

Teilprojekt 6: Abfallendlagerung

Im Abfall-Endlager werden die im Entsorgungszentrum anfallenden radioaktiven Stoffe aufgenommen und auf Dauer sichergestellt. Es muß dabei ein für die Menschen und die Umwelt sicherer Abschluß von der Ökosphäre gewährleistet werden. Verantwortlich für dieses Teilprojekt ist gemäß § 9a AtG die Bundesrepublik Deutschland. Sie bedient sich zur Erfüllung dieser Aufgabe der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig. Das hierfür erforderliche Planfeststellungsverfahren gemäß § 9b AtG wurde von der PTB bereits eingeleitet.

Teilprojekt 7: Übergeordnete Infrastruktur

Hierzu zählen alle notwendigen peripheren Einrichtungen und zentralen Dienste der Verwaltung, Versorgung des Strahlen- und Umweltschutzes sowie der technischen Hilfsbetriebe. Die Zahl der insgesamt im Entsorgungszentrum Beschäftigten wird auf knapp 4000 Personen geschätzt.

7. Schlußbemerkung

Zusammenfassend darf festgestellt werden, daß inzwischen alles Notwendige getan wurde, um die Entsorgung unserer Kernkraftwerke sicherzustellen. Vorläufige vergleichende Sicherheitsanalysen zeigen, daß das Gefährdungspotential und das mit dem Betrieb eines großen Kernkraftwerks und dem des geplanten Entsorgungszentrums verbundene Risiko in etwa gleich groß sind. Verglichen mit den Ortsdosiswerten in der Nähe von Kernkraftwerken werden die Werte der Wiederaufarbeitungsanlage im bestimmungsgemäßen Betrieb etwa zehn mal höher sein. Gemessen an der natürlichen Strahlenbelastung müssen diese Werte als akzeptabel gelten. Ein Nullrisiko ist in keinem Bereich der Technik zu realisieren.

Bedauerlich ist die immer mehr um sich greifende Entwicklung, daß Verwaltungsgerichte zu Entscheidungen angerufen werden, um die sich entweder Politiker drücken oder aber deren Sachverhalt unter Naturwissenschaftlern und Technikern ausgefochten werden müßte.

8. Weiterführende Literatur

- ^[1] SCHMIDT-KÜSTER, W.J.: Internationale Struktur des nuklearen Brennstoffkreislaufs, Atomwirtschaft, Bd. 20, 1975, S. 282-288
- ^[2] BRAATZ, U.: Die Versorgung in Natururan, Atomwirtschaft, Bd. 20, 1975, S. 87-88
- ^[3] EHRFELD, W., EHRFELD, U.: Uranisotopentrennung, Chemiker-Zeitung, Bd. 101, 1977, S. 53-63
- ^[4] SCHNEIDER, V.W., PLOGER, F.: Herstellung von Brennelementen, Chemiker-Zeitung, Bd. 100, 1976, S. 451-483
- ^[5] KOCH, G.: Die chemische Aufarbeitung der bestrahlten Kernbrennelemente, Chemiker-Zeitung, Bd. 101, 1977, S. 64-81
- ^[6] SCHÜLLER, W.: Entsorgung der Kernkraftwerke – eine ökologische Notwendigkeit, Umschau, Bd. 77, 1977, S. 41-49
- ^[7] STOLL, W.: Gibt es ein Plutonium-Problem? Atomwirtschaft, Bd. 20, 1975, S. 419-423
- ^[8] GASTEIGER, R., HÖHLEIN, G.: Behandlung radioaktiver Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen, Atomwirtschaft, Bd. 20, 1975, S. 349-353
- ^[9] KÜHN, K.: Zur Endlagerung radioaktiver Abfälle, Atomwirtschaft, Bd. 21, 1976, S. 357-362
- ^[10] MISCHKE, J.: Stand der Projektierung des deutschen Entsorgungszentrums, Atomwirtschaft, Bd. 23, 1978, S. 342-347

Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

U. Wenzel

Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Die Entsorgung von Kernkraftwerken soll in der Bundesrepublik Deutschland durch die Schließung des Kernbrennstoffkreislauf sichergestellt werden. Für dieses Konzept sprechen mehrere Gründe:

- Ausgediente Brennelemente enthalten einen beträchtlichen Anteil an nicht gespaltenem Material (LWR 1,3 %, HTR 4 %). Durch die Rezyklierung dieses Restkernbrennstoffes können die natürlichen Ressourcen an spaltbaren Nukliden erheblich erweitert werden.
- ^{239}Pu aus Leicht- und Schwerwasserreaktoren wird für die Einführung der Brütertechnologie benötigt; ^{233}U aus den Hochtemperaturreaktoren ist der beste Kernbrennstoff für thermische Reaktoren.
- Der hochradioaktive Abfall aus Kernkraftwerken kann nur unter völligem Abschluß von der Biosphäre endgelagert werden. Ausgediente Brennelemente gewährleisten diesen Abschluß nicht, der Abfall muß in einer gegen Auslaugung resistenten Matrix gebunden werden.
- Durch die Rezyklierung von nicht verbrauchtem Kernbrennstoff durch den Reaktor wird die Gefahr des Mißbrauchs von spaltbarem Material verringert.
- Letztendlich fordert das Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) die Minimierung jeglichen radioaktiven Abfalls (§ 9a, Abs. 1). LWR-Brennelemente enthalten ca. 3,5 %, HTR-Brennelemente ca. 10 % Spaltprodukte, so daß der hochradioaktive Abfall durch eine Rezyklierung von Brenn- und Brutstoff drastisch reduziert werden kann.

Voraussetzung für eine Rezyklierung der Wertstoffe und die Konditionierung des Abfalls eines verbrauchten Brennelementes ist seine Fraktionierung in die Bestandteile:

- Spaltprodukte (hochradioaktiver Abfall)
- Hüllenmaterial (mittel- bzw. schwach-radioaktiver Abfall)
- Brenn- und Brutstoff (Wertstoffe)

Diese Aufgabe wird von der Wiederaufarbeitung ausgedienter Kernbrennelemente durch chemische Trennprozesse wahrgenommen.

2. Inventar ausgedienter Kernbrennelemente

Frische Kernbrennelemente enthalten den Brennstoff in oxidischer Form als Tabletten (LWR) in Zirkaloyhülsen oder als Partikel (HTR) in einer Graphitmatrix. Die Zusammensetzung ist in Tabelle 1 festgehalten.

	LWR	HTR
Brennstoff	3,3 % ^{235}U	8,2 % ^{235}U
Brutstoff	96,7 % ^{238}U	91,3 % ^{232}Th
Hüllenmaterial	Zirkaloy	Graphit

Tab. 1:
Zusammensetzung von frischem LWR- und HTR-Brennstoff

Während des Reaktorbetriebs wird diese Zusammensetzung erheblich verändert. Verantwortlich sind im wesentlichen folgende Kernreaktionen, die der Brennstoff mit induzierten Spaltneutronen eingeht:

- Kernspaltung
- Brutprozeß
- Transmutation

2.1 Kernspaltung

Die Kernspaltung ist die eigentliche energieerzeugende Reaktion. Durch Neutronen wird der Spaltstoff in zwei nahezu gleichgroße Bruchstücke gespalten, die mit hoher Geschwindigkeit die sie umgebende Materie durchdringen und sie dabei aufheizen. Die Wärme wird vom Kühlmedium abgeleitet und in elektrische Energie umgewandelt. Neben den Spaltprodukten werden Neutronen erzeugt, die den Spaltprozeß aufrechterhalten.

Beim Spaltprozeß entsteht ein breites Spektrum von Spaltprodukten, von ^{73}Zn bis ^{161}Dy . Durch die ständige Erzeugung dieser Nuklide kann das Spaltinventar im Reaktor nicht vollständig genutzt werden. Einige der Spaltprodukte wie ^{103}Rh , ^{131}Xe , ^{135}Xe , ^{143}Nd und ^{149}Sm wirken als starke Neutronengifte und bringen die Spaltreaktion letztlich zum Erliegen.

Die Häufigkeit einzelner Spaltprodukte hängt vom eingesetzten Spaltstoff ab (Bild 1). Die Unterschiede sind nicht überwältigend, beeinflussen jedoch die Neutronenbilanz durch die unterschiedlichen Erzeugungsraten einiger Neutronengifte.

2.2 Brutprozeß

Thermische Neutronen gehen neben der Spaltreaktion auch Wechselwirkungen mit den Brutstoffen ^{232}Th und ^{238}U ein. Dabei werden zwei Nuklidketten gebildet, die prinzipiell den gleichen Aufbau haben (Bild 2). Unter Neutroneneinfang wird aus

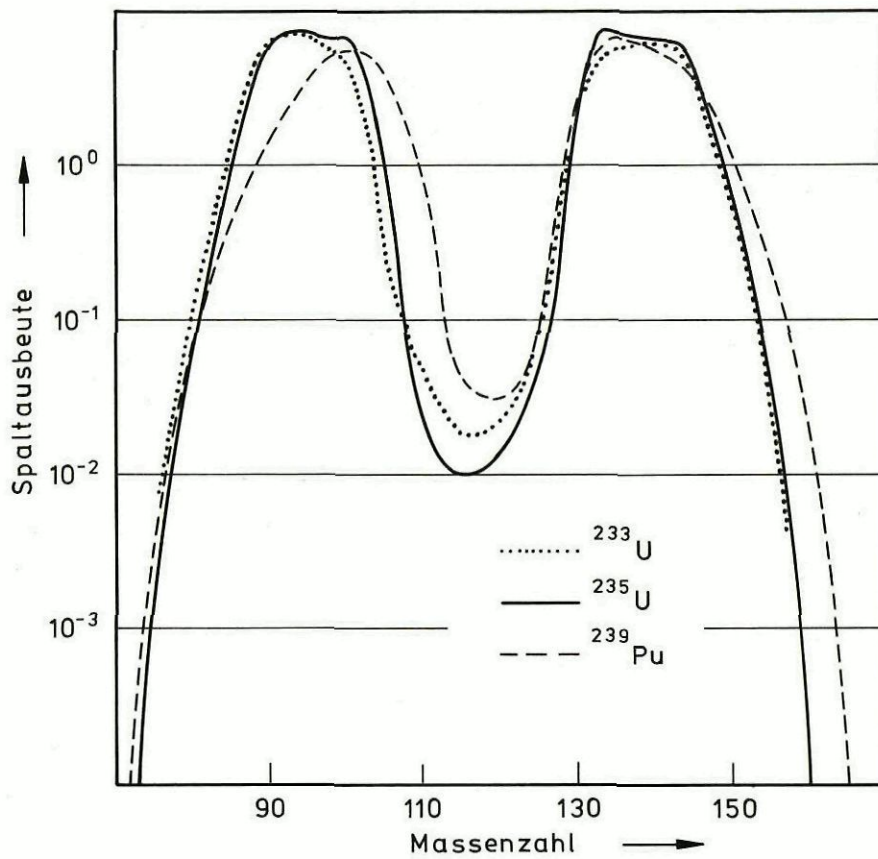


Bild 1:
Spaltproduktverteilung
bei der Kernspaltung von
 ^{233}U , ^{235}U und ^{239}Pu

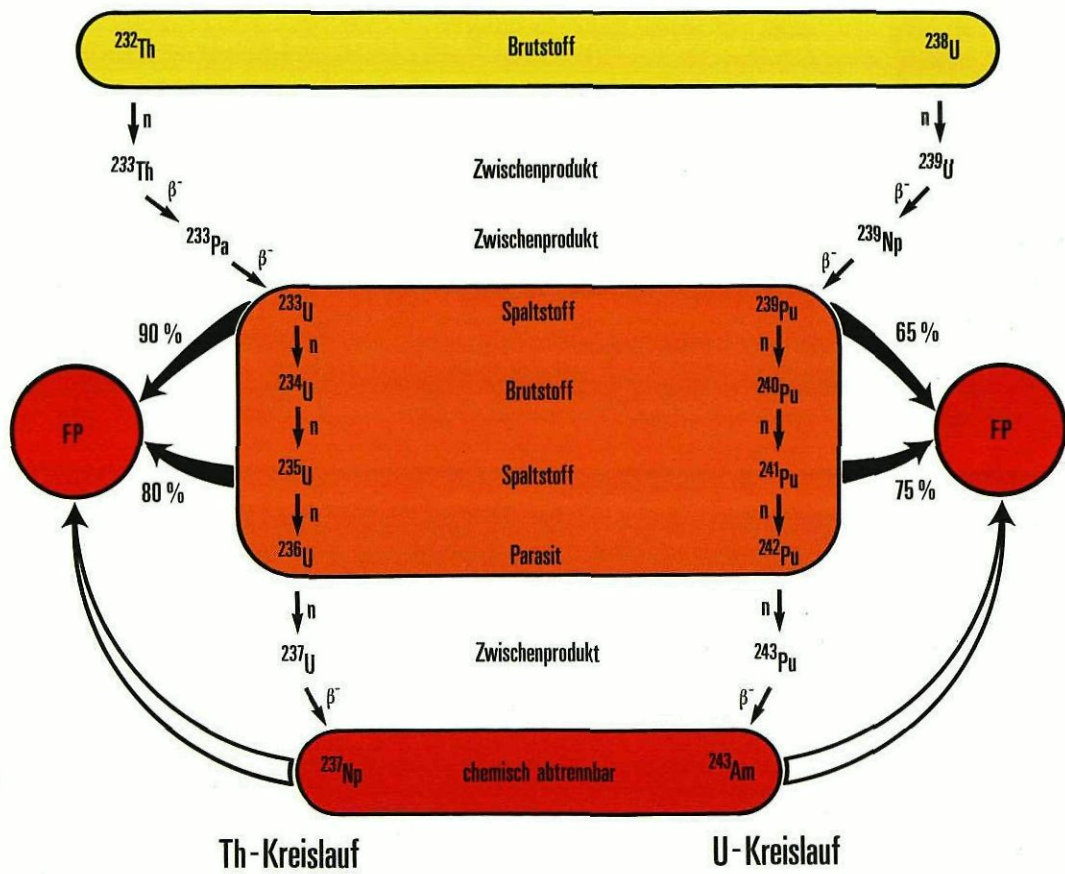


Bild 2:
Brutprozeß mit ^{232}Th und ^{238}U

den Ausgangsstoffen ein kurzlebiges Zwischenprodukt gebildet, das sich durch zweifachen β -Zerfall in einen neuen Spaltstoff verwandelt. Dieser Spaltstoff ist bereits zu ca. 30 % an der Energieerzeugung während des Reaktorbetriebs beteiligt. Daneben wandelt er sich durch Neutronenabsorption zu einem langlebigen Isotop des gleichen Elements um, das seinerseits Brutstoff für einen zweiten Spaltstoff ist. Die weiteren Glieder der Nuklidkette bestehen aus einem langlebigen, parasitären Isotop – weder Brut- noch Spaltstoff – aus dem über ein kurzlebiges, β -instabiles Isotop ein chemisch abtrennbares Nuklid entsteht.

2.3 Transmutation

Brutprozeß und Transmutation werden durch die gleichen Kernreaktionen verursacht. Während des Reaktorbetriebs werden die Endglieder des Brutprozesses durch Neutroneneinfang und Kernzerfall in höhere Transurannuklide umgewandelt (Bild 3). Im Th-Kreislauf sind noch die Folgeprodukte von ^{230}Th von Bedeutung. Dieses natürliche Th-Isotop ist aus dem ^{238}U -Kernzerfall entstanden und bleibt bei der U-Erzaufbereitung aus U-Th-Erzen in der Th-Fraktion. Handelsübliche Ausgangsmaterialien für Th-Brennelemente enthalten ca. 10 ppm ^{230}Th .

Aus dem eingangs erwähnten Entsorgungskonzept kann zwingend die Notwendigkeit abgeleitet werden, die Brennelemente in ihre einzelnen Komponenten aufzuspalten. An die Leistungsfähigkeit der Fraktionierungsmethoden werden höchste Anforderungen gestellt:

- Einerseits wird durch die Rückgewinnung stark verunreinigten Brenn- und Brutstoffes seine Rezyklierung stark erschwert und die Leistung des Kernreaktors durch Vergiftung gemindert
- Andererseits kann man durch eine saubere Trennung zwischen mittel und stark radioaktivem Abfall unterscheiden und so die Endlagerungskosten in Grenzen halten

Die Fraktionierung der Brennelemente kann nur durch chemische, bevorzugt naßchemische Prozesse, durchgeführt werden. Dazu ist eine Überführung der Brennelemente in eine lösliche Form notwendig, die ihrerseits erheblich leichter mit der Biosphäre in Wechselwirkung treten kann. Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen ist deshalb nur unter ständiger Kontrolle des chemischen Verfahrens und extremer Abschirmung der Verfahrenskomponenten möglich.

Damit ist die Auswahl sowohl der chemischen Trennprozesse als auch der dazu notwendigen Verfahrenskomponenten eng begrenzt.

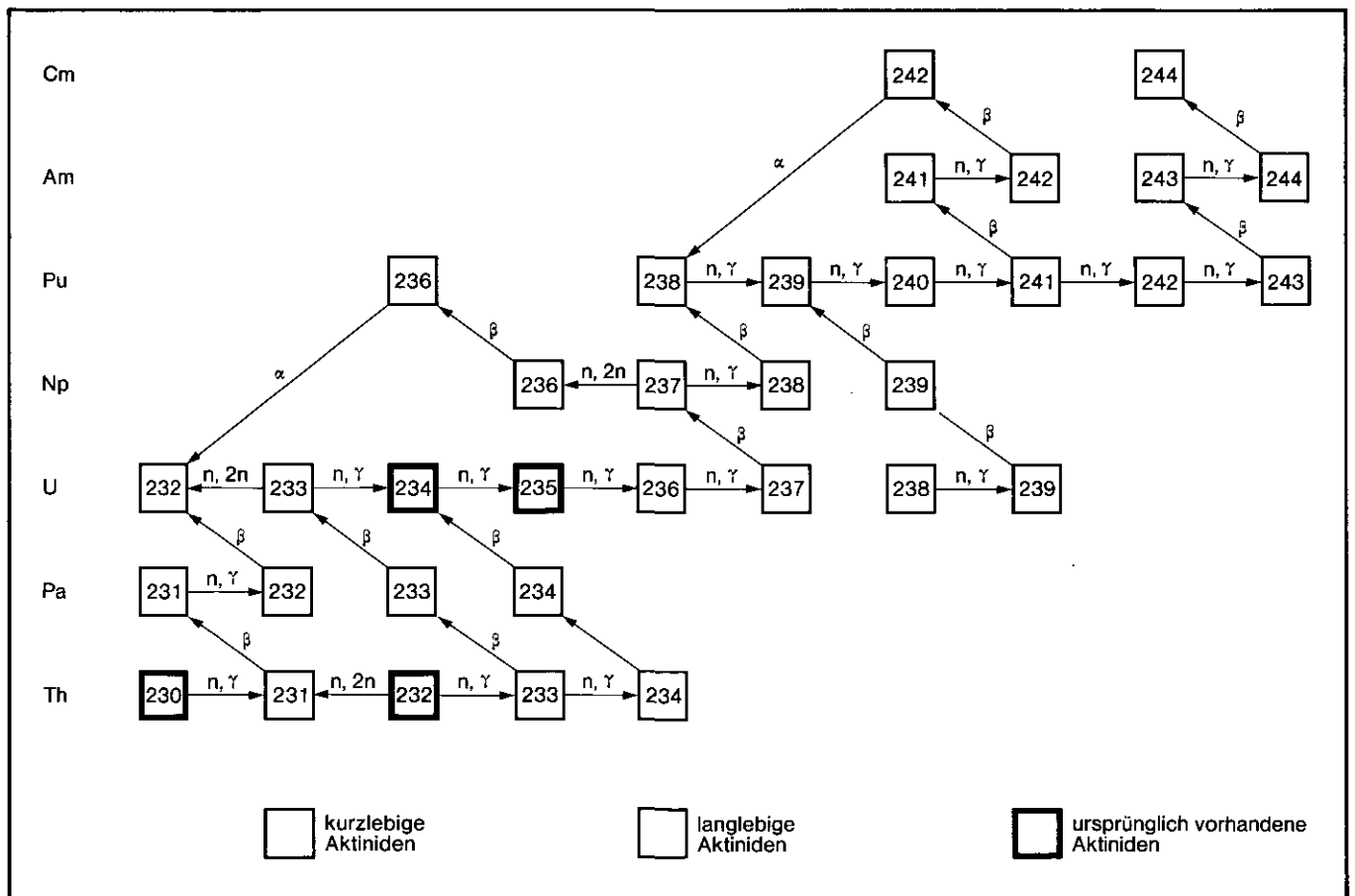


Bild 3: Aufbau der Aktinidennuklide aus den Brennstoffkomponenten

3. Der Wiederaufarbeitungsprozeß

Nach ihrer Entladung bestehen die Brennelemente aus den Komponenten:

- Hüllenmaterial
- unverbrauchter Brutstoff
- unverbrauchter und neu erzeugter Brennstoff
- Spaltprodukte

Der chemische Prozeß muß

- unkontrollierte Freisetzungen von Radioaktivität durch heftige exotherme Reaktionen (z.B. Explosionen, Brände) vermeiden
- unempfindlich gegen kleinere Betriebsstörungen sein
- bei größeren Störungen eine problemlose Wiederholung einzelner Prozessschritte ermöglichen

- voll kontrollierbar sein
- eine Vergrößerung der Abfallmengen bzw. -volumina durch Rezyklierung der Prozeßchemikalien in Grenzen halten.

Die einzelnen Verfahrenskomponenten müssen

- kritisch sicher ausgelegt sein
- eine Fernbedienung gewährleisten
- leicht auswechselbar sein
- Beständigkeit gegen Korrosion und Verschleiß aufweisen.

Verfahren, die diesen Forderungen möglichst nahe kommen, sind der THOREX-Prozeß für den Th-U- und der PUREX-Prozeß für den U-Pu-Brennstoffkreislauf. Beide basieren auf der Extraktion als chemischer Trennung.

Prinzipiell sind die einzelnen Verfahrensschritte eines Wiederaufarbeitungsprozesses in Bild 4 dargestellt. Er besteht aus der mechanischen Zerkleinerung der Brennelemente (Zerkhacken beim U-Pu-, Zermahlen beim Th-U-Zyklus), der chemischen Abtrennung des Hüllenmaterials durch Auslaugung oder Verbrennung, der Auflösung des Brennstoffes, der extraktiven Auftrennung der Brennstoffkomponenten mit Speiselösungseinstellung, Vordekontamination und Fraktionierung und der Feinreinigung der Produkte für die sich anschließende Rezyklierung.

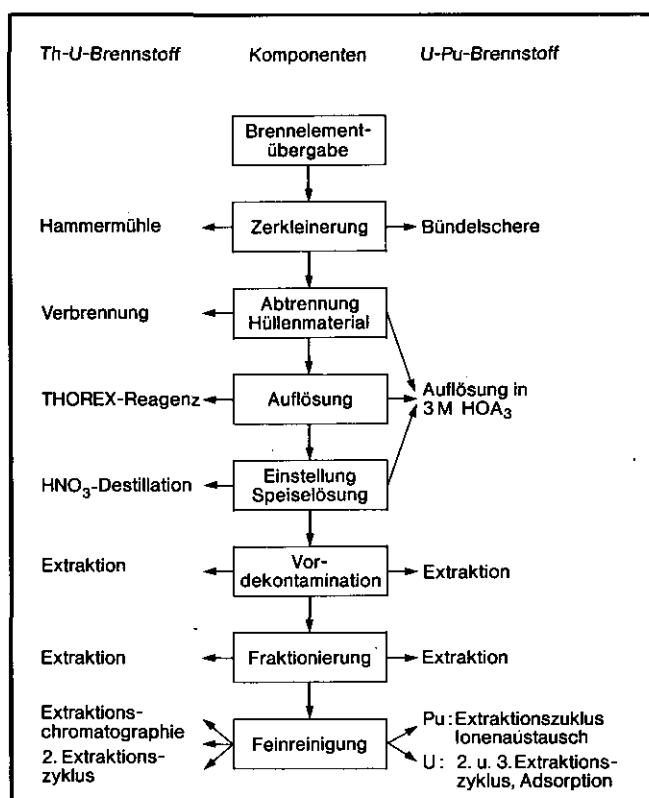


Bild 4:
Blockschema eines Wiederaufarbeitungsprozesses für ausgediente Kernbrennelemente

3.1 PUREX-Prozeß

Der PUREX-Prozeß ist das Referenzverfahren für die Wiederaufarbeitung von ausgedienten U-Pu-Brennelementen. Auch in dem von der Bundesregierung geplanten Entsorgungszentrum soll dieser Prozeß angewendet werden.

In Bild 5 ist das Verfahrensflißbild der Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe (WAK) in Karlsruhe dargestellt. Die Brennelemente werden nach der Entladung aus dem Reaktor

ca. ein Jahr zwischengelagert, damit kurzlebige Spaltprodukte zerfallen können und die Strahlenbelastung gesenkt wird. Mittlerweile sind wesentlich längere Kühlzeiten im Gespräch.

Nach der Übergabe werden die Brennelemente zerlegt und die Brennstäbe einzeln oder in Bündeln mit einer Einstab- oder Bündelschere in ca. 5 cm lange Stücke zerschnitten. Diese Stücke fallen in den Auflöser und werden mit 6M HNO₃ ausgelaut. Die resultierende Brennstofflösung kann nach der Abtrennung des Feststoffes direkt weiterverarbeitet werden, bei Brennstoff höherer Pu-Konzentration wird dies nicht mehr möglich sein. PuO₂ ist unter den vorliegenden Bedingungen nicht quantitativ löslich. Bei der dann vorgesehenen, mit F⁻ katalysierten Auflösung in konzentrierter HNO₃ muß sich eine Speiselösungseinstellung anschließen.

Der in der WAK durchgeführte 1. Extraktionszyklus enthält keine Vordekontaminationsstufe, andere Wiederaufarbeitungsanlagen verzichten auf diesen Prozeßschritt nicht.

Die Brennstofflösung wird in der Mitte der 1. Extraktionsbatterie eingespeist und wandert zum Batterieaustritt. Ihr entgegen strömt eine organische Phase (30. % Tributylphosphat in Dodekan oder Kerosin), die gute Verteilungskoeffizienten für vier- und sechswertige Aktiniden im HNO₃-Medium aufweist. In den einzelnen Kammern werden beide Phasen ver- und entmischt, um den Extraktionsvorgang zu beschleunigen. Die organische Phase tritt am anderen Batterieende aus. Am gleichen Ende wird eine wässrige Waschlösung zugegeben, die die bereits beladene, organische Phase von mitextrahierten Verunreinigungen befreit. Die 1. Batterie besteht somit aus einem Extraktions- und einem Waschteil und ist für die Dekontamination der Produkte U und Pu von den Spaltprodukten gedacht.

Die 2. Batterie dient der Verteilung der Produkte. Die beladene, organische Phase wird wieder in der Mitte eingespeist. Ihr entgegen strömt verdünnte HNO₃ mit einem Reduktionsmittel (üblicherweise Fe[(NH₂)SO₃]₂). Pu wird zu nicht extrahierbarem Pu(III) reduziert und dadurch rückextrahiert. Zur Senkung der Abfallmenge durch Fremdchemikalien werden im Kernforschungszentrum Karlsruhe elektrochemische Extraktoren für die Pu-Reduktion entwickelt. Am Batterieaustritt für die wässrige, Pu-haltige Phase wird unbeladenes Extraktionsmittel zugegeben, um die wässrige Phase von rückextrahiertem U zu befreien. Die zweite Batterie besteht aus einem Verteilungs- und einem Waschteil; hier wird die wässrige Phase gewaschen.

In der dritten Extraktionsbatterie wird U mit verdünnter HNO₃ rückextrahiert, dazu kann die gesamte Batterie ausgenutzt werden.

An den Extraktionszyklus schließen sich die getrennten Reinigungszyklen für die Produkte U und Pu an. Der zweite Zyklus besteht für beide Elemente aus einer Extraktion und Rückextraktion im System TBP/HNO₃, die Feinreinigung wird durch chromatographische Verfahren vorgenommen:

- Adsorption der Restspaltprodukte (hauptsächlich Zr/Nb-Spuren) an Silicagel für den U-Strom
- Bindung von Pu an Anionenaustauscher und Auswaschung der Spaltproduktsuren für den Pu-Strom.

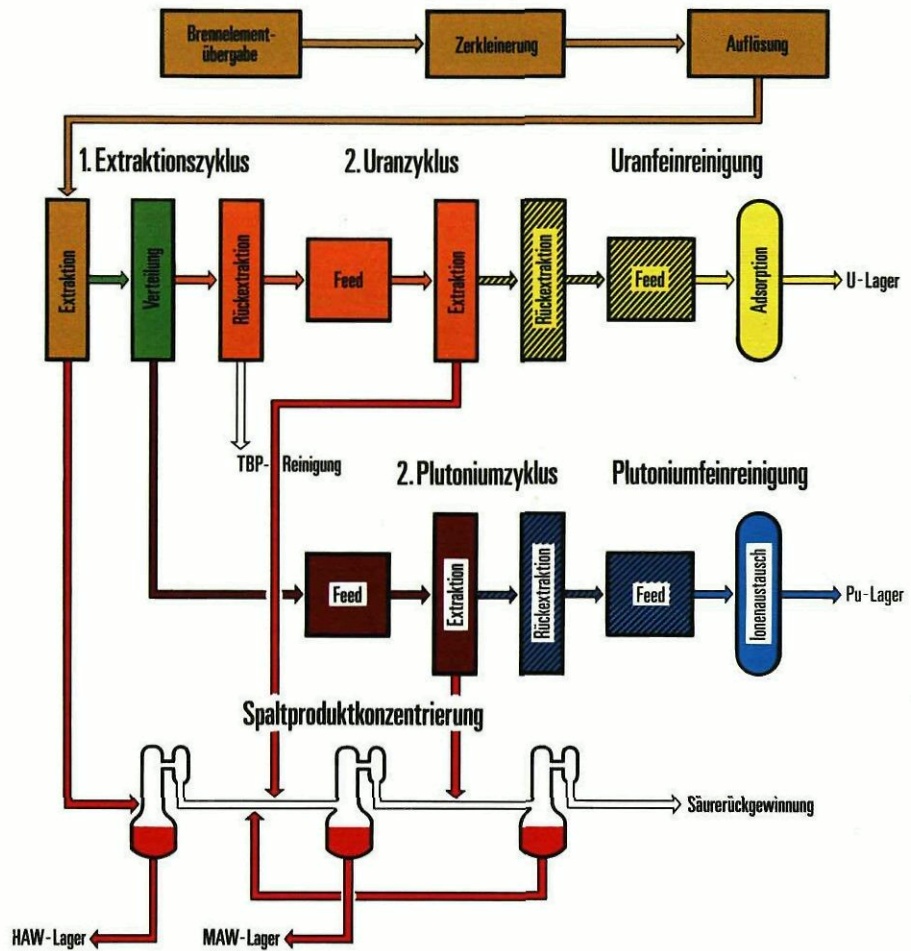
Angestrebt sind Dekontaminationsfaktoren von $2 \cdot 10^7$ für beide Produkte.

Periphere Prozesse der Wiederaufarbeitung sind die Säurerückgewinnung aus den Abfallströmen durch Destillation und die Reinigung des Extraktionsmittels durch eine extraktive Solventwäsche.

3.2 THOREX-Prozeß

Die Wiederaufarbeitung Th-haltiger Brennelemente unterscheidet sich sowohl bei der Zielsetzung als auch bei der

Bild 5:
Blockschema der
Wiederaufarbeitung von
U/Pu-haltigen Brennelementen



Durchführung von ihrer Schwesterkomponente des U-Pu-Kreislaufes:

- Eine kalte Refabrikation des rückgewonnenen Spaltstoffes ist unmöglich, denn U ist wegen seines ^{233}U - und ^{234}U -Gehaltes stark α -aktiv, und die Zerfallsprodukte von ^{232}U (s. Kap. 2.3) emittieren hochenergetische γ -Strahlen, so daß die gesamte Rezyklierung des spaltbaren Materials fernbedient vorgenommen werden muß.
- Zur Zeit erscheint eine direkte Rezyklierung des gesamten Brutstoffes nicht ökonomisch. Der im Reaktor verbrauchte Spaltstoff wird durch frische, Th-haltige Brennelemente ersetzt. Damit werden ca. 50.% des Restbrutstoffes nicht bei der Rezyklierung benötigt; sie sollen nach einer Zwischenlagerung von 20 a – bis zum totalen Zerfall von ^{228}Th aus ^{232}U – bei der kalten Brennelementfabrikation eingesetzt werden.
- Beim Reaktorbetrieb entsteht aus ^{235}U und ^{238}U Pu, das im Gegensatz zum LWR-Pu zur Hauptsache aus nicht spaltbaren Isotopen besteht und somit kein Wertstoff ist. Wegen seiner großen Radiotoxizität stört dieser Bestandteil aber sowohl die Abfallendlagerung als auch die Th-Weiterverwendung; im Wiederaufarbeitungsschema muß deshalb Pu ein eigener Trennschritt eingeräumt werden.

Vom Standpunkt der Wiederaufarbeitung ist der verbrauchte Brennstoff des Th-U-Kreislaufes ein Vierkomponentengemisch (Th, U, Pu, ev. Np, Abfall, im Gegensatz zum LWR-Brennstoff mit U, Pu, Abfall) und die geforderten Dekontaminationsfaktoren für die Produkte liegen wegen der heißen U-Refabrikation und der Th-Zwischenlagerung mit 10^4 - 10^5 mehrere

Größenordnungen unter denen der LWR-Wiederaufarbeitungsprodukte.

Das Blockflußbild der Th-U-Brennelementwiederaufarbeitung ist in Bild 6 wiedergegeben. Nach der Übergabe werden die Brennelemente zermahlen und der Graphit verbrannt. Dieser Verfahrensschritt stellt höchste Anforderungen an das Apparateswesen und macht allein das Head-End der Th-U-Brennelementwiederaufarbeitung so teuer wie die gesamte LWR-Wiederaufarbeitung. Die resultierende Oxidasche wird in THO-REX-Reagenz (13MHNO_3 ; $0,1\text{MAI}(\text{NO}_3)_3$; $0,05\text{MHF}$) aufgelöst. Vor der Extraktion ist eine Einstellung der Speiselösung (Feed) durch Abdestillation von HNO_3 notwendig. Der Extraktionsprozeß gliedert sich in die Vordekontamination durch Ko- und Rückextraktion der Wertstoffe und Abtrennung der Hauptmenge der Spaltprodukte und – nach erneuter Speiselösungseinstellung – in die Fraktionierung der Wertstoffe durch Koextraktion der Wertstoffe, Verteilung von Th und U – im Gegensatz zum PUREX-Prozeß beruht die Verteilung auf unterschiedlichen Extraktionsverhalten zweier extrahierfähiger Komponenten – und Rückextraktion von U. Pu und Np werden entweder aus dem vorgereinigten, intermediären Th/U-Produktstrom oder aus dem mittelaktiven Abfallstrom des zweiten Koextraktionsschrittes durch ein extraktionschromatographisches Verfahren abgetrennt.

Die Feinreinigung erfolgt bei U analog dem PUREX-Prozeß durch einen zweiten Extraktionszyklus, Th wird von den restlichen Pu-Spuren durch einen extraktionschromatographischen Prozeß befreit. Bei beiden chromatographischen Verfahren wird Pu auf einem organischen, mit Trioktylamin benetzten Träger gebunden.

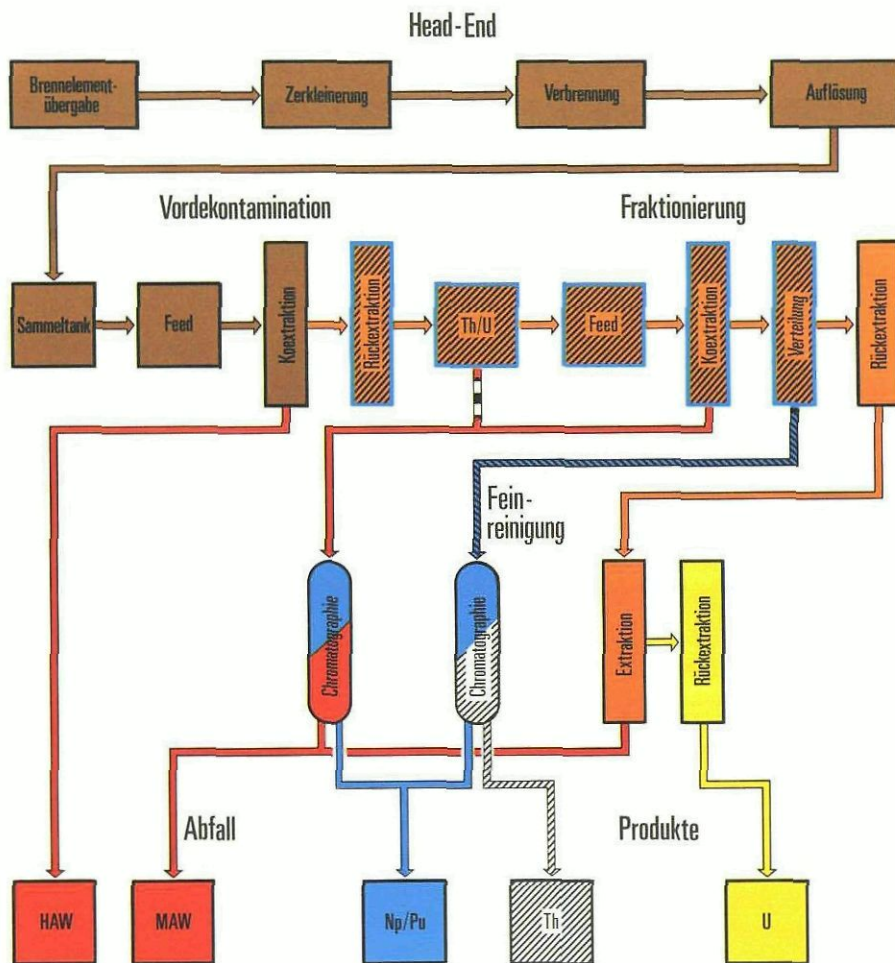


Bild 6:
Blockschema der
Wiederaufarbeitung von
Th/U-haltigen Brennelementen

3.3 Separatoren

Die heutigen Referenzverfahren zur Wiederaufarbeitung greifen im wesentlichen auf zwei Methoden zurück, die Extraktion und die Chromatographie.

Für die Extraktion sind bisher folgende Apparaturen eingesetzt worden (Bild 7):

- **Füllkörperkolonnen**
Die leichte organische Phase wird unten, die schwere wässrige Phase oben in die Kolonne eingespeist und strömen aneinander vorbei. Füllkörper sorgen für die feine Verteilung beider Phasen. Vorteilhaft ist die extrem geringe mechanische Belastung, nachteilig die lange erforderliche Kontakt-

zeit, die daraus resultierende Strahlenbelastung und die Länge der Säule (bis zu 25 m), die eine entsprechende und kostspielige Abschirmung notwendig macht. Durch Niederschläge können die Säulen verstopfen.

- **Gepulste Kolonnen**
Das Einspeisungsprinzip ist das gleiche wie bei den Füllkörperkolonnen. Auf die Flüssigkeitssäule wirkt ein periodischer Impuls, der die Phasen durch Verwirbelung an Siebböden zerteilt. Geringere Kontaktzeiten ermöglichen eine kompakte, billigere Bauweise und verursachen eine geringere Strahlenbelastung. Grenzflächenverschmutzungen (s. Kap. 4) sind verhältnismäßig leicht zu entfernen. Der mechanische Verschleiß ist gering.

Bild 7:
Raumbedarf der Extraktionsapparate
in der Kerntechnik

Ungepulste Kolonne	Mischabsetzer	Gepulste Kolonne	Zentrifuge

- **Mischabsetzer**

Mischabsetzer werden in horizontaler Bauweise verwendet. Die Phasen werden in einer vertikal angeordneten Mischkammer verwirbelt. Schräg dazu liegt die Absetzkammer, in der sich die erzeugte Mischphase wieder trennt. Durch Aneinanderreihung mehrerer Einheiten kann eine Mehrstufenextraktion durchgeführt werden.

Die Phasen werden durch Rührer oder pneumatisch erzeugte Impulse vermischt. Gerührte Mischabsetzer sind effizienter, gepulste weniger stör anfällig.

- **Zentrifugalextraktoren**

Zentrifugalextraktoren haben sehr geringe Kontaktzeiten und kleine Apparatedimensionen. Sie funktionieren ähnlich den Mischabsetzern, die Mischphase wird durch Rühren erzeugt, dann allerdings durch Zentrifugalkräfte wieder getrennt. Für die Kerntechnik sind sie wegen der oben genannten Vorzüge außerordentlich attraktiv, ihr Einsatz verzögert sich dadurch, daß die handelsüblichen Extraktoren aus Kritikalitätsgründen verändert werden müssen und ihre beweglichen Teile ein großes Störungsrisiko besitzen.

Chromatographische Verfahren bedienen sich in der Wiederaufarbeitung ausschließlich der Füllkörpersäulen. Ihre Regenerationsfähigkeit ist beschränkt, sie werden deshalb bisher für Trennungen aus schwach- und mittelaktiven Lösungen mit geringerer Strahlenbelastung eingesetzt. (Eine Ausnahme bildet die früher durchgeführte ^{233}Pa -Abtrennung aus Th-U-Brennstofflösungen mit dem extrem strahlenresistenten, anorganischen Vycorglas als Trägermaterial.)

4. Spezielle Probleme der Wiederaufarbeitung

Die übliche Einteilung des ausgedienten Kernbrennstoffes in Spaltstoff, Brutstoff und Hüllenmaterial ist außerordentlich anschaulich und wurde deshalb auch an dieser Stelle verwendet; vom chemischen Standpunkt aus ist sie genauso außerordentlich unsinnig und dürfte einiges zu der Leichtfertigkeit beigetragen haben, mit der anfänglich die Durchführbarkeit der Wiederaufarbeitung beurteilt worden ist.

In Wirklichkeit besteht der verbrauchte Kernbrennstoff aus einer Vielzahl von Elementen respektive deren Oxiden, die sich bei chemischer Behandlung in eine noch größere Vielfalt an Verbindungen mit zum Teil völlig unterschiedlichem chemischen Verhalten verwandeln. Berücksichtigt werden müssen dazu Chemie und Radiochemie der Prozeßchemikalien und letztlich sind – bei der Verhinderung der unerwünschten Freisetzung von Radioaktivität – einzelne Nuklidverbindungen zu beachten. Ein derart komplexes System ist bisher noch nicht einem geordneten chemischen Prozeß unterworfen worden.

Es ist unmöglich, an dieser Stelle einen vollständigen Problemerkatalog der Wiederaufarbeitung auch nur zu erstellen, geschweige denn die Lösungswege aufzuzeigen. Es sollen hier nur einige Bestandteile erwähnt werden, die den Wiederaufarbeitungsprozeß auf die verschiedensten Arten beeinflussen:

- **Radiolyse des Extraktionsmittels**

Durch die radiolytische Zersetzung von Tributylphosphat entstehen hauptsächlich Di- und Monobutylphosphat mit hohen Retentionsfaktoren für die Wertstoffe, deren Rückgewinnung sich dadurch verschlechtert. Soll das Solvenz rezykliert werden, müssen die Radiolyseprodukte vorher durch eine extraktive Wäsche entfernt werden.

- **Crud-Bildung**

Die Crud-Bildung wird ebenfalls durch die Radiolyse von TBP verursacht. Spaltprodukte wie Zr reagieren mit den Zersetzungsprodukten des Solvenz zu schaumartigen Niederschlägen – den Cruds – die sich bevorzugt an den Phasengrenzflächen ansammeln. Sie behindern den Stofftransport und können den Phasenfluß mechanisch blockie-

ren. Da diese Verbindungen hauptsächlich bei geringen Säurekonzentrationen entstehen, kann durch eine extraktive Vordekontamination mit hoher Säurekonzentration die Ausbildung solcher Komplexe zurückgedrängt werden. Die Verwendung von Extraktoren mit geringer Kontaktzeit ist ebenfalls erfolgversprechend.

- **Technetiumproblem**

Das Spaltprodukt Te liegt in der Brennstofflösung als extrahierbares TeO_4^{2-} vor. In reduziertem Medium wird es zu säureunlöslichem TeO_2 und kann zu Verstopfungen führen. Diese Reaktion ist systemimmanent, ihr Einfluß muß durch eine geeignete apparative Auslegung eingedämmt werden.

- **Die Aktiniden**

Dieser Begriff ist bei den Betrachtungen über die Wiederaufarbeitung entfremdet worden und umfaßt Np und die Transplutoniumelemente (im Th-U-Brennstoffkreislauf ist die Einbeziehung von ^{231}Pa noch nicht verboten). Im gültigen Entsorgungskonzept rechnen die Aktiniden zum hochradioaktiven Abfall, bei der Wiederaufarbeitung werden sie ohne Beeinflussung vollständig in den Abfallstrom gelenkt. Ihre Endlagerung ist allerdings umstritten. Durch ihre Langlebigkeit stellen sie eine potentielle Gefährdung der Biosphäre für Millionen von Jahren dar.

Die Alternativlösung – die Inzineration (Vernichtung in Kernreaktoren) – ist hinsichtlich ihrer Durchführbarkeit noch nicht bewiesen worden. Für die Wiederaufarbeitung bedeutet die Inzineration die Einführung neuer Trennprozesse, auch diese sind zur Zeit nicht einsatzbereit.

- **Das Tritiumproblem**

Tritium entsteht in den Brennelementen durch ternäre Spaltung, wird bei der Wiederaufarbeitung während der Auflösung als HTO bzw. TNO_3 freigesetzt (LWR-Brennelement) und verteilt sich ohne Eingriff über sämtliche Prozeßströme. Durch spezielle Solventwäsche kann es in der Eingangsstufe des Wiederaufarbeitungsprozesses zurückgehalten und dort angereichert werden, so daß eine T-Kontamination auf kleinere Lösungsmittelvolumina beschränkt bleibt.

5. Zusammenfassung

Die Ausnutzung der Kernenergie ist ohne die Schließung des Brennstoffkreislaufes sowohl aus ökonomischen als auch aus sicherheitstechnischen Gründen nicht denkbar. Die Wiederaufarbeitung des ausgedienten Brennstoffes ist die zentrale Komponente der Schließung. Sie hat sich sowohl von der Prozeßdurchführung als auch von den Auswirkungen auf die Biosphäre her als machbar erwiesen, eine Vertiefung der Kenntnisse über das Wiederaufarbeitungssystem durch intensive Forschung ist aber noch notwendig.

6. Weitergehende Literatur

- BAUMGÄRTNER, F.: Chemie der nuklearen Entsorgung. Thiemig-Taschenbücher, Bd. 65/66, Verlag Karl Thiemig, München (1978)
- KELLER, C., MÖLLINGER, H.: Kernbrennstoffkreislauf. Bd. I u. II, Dr. Alfred Huthig Verlag, Heidelberg (1978)
- MERZ, E.: Wiederaufarbeitung von Kernbrenn- und Brutstoffen. Vorlesung an der RWTH Aachen, KFA-ICT-IB-418/77 (1977)

Zurückhaltung der flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte

H. Ringel, M. Barnert-Wiemer, E. Zimmer

Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Bei der Kernspaltung von Uran und Plutonium im Kernreaktor entstehen etwa 30 verschiedene Elemente mit nennenswerter Ausbeute. Zusätzlich bilden sich durch Neutroneneinfang Transurane und einige im Reaktorkern vorhandene Elemente werden durch Neutroneneinfang aktiviert. Viele dieser künstlich gebildeten Nuklide sind radioaktiv; sie zerfallen mit sehr unterschiedlichen Halbwertszeiten zu stabilen Nukliden. Einige der Elemente sind gasförmig oder leicht flüchtig; sie werden daher bei der Aufgabe: „Rückhaltung flüchtiger Spaltprodukte“ zusammen betrachtet. Erweitert wird die Gruppe noch durch die „radioaktiven Aerosole“. Dies sind kleine Schwebstoffteilchen (Aerosole), welche an sich nicht flüchtige radioaktive Isotope tragen.

Zum Schutz der Umwelt vor radioaktiver Kontamination müssen diese flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte sehr sorgfältig erfaßt und solange zurückgehalten werden, bis ihre Radioaktivität auf einen unbedeutenden Rest abgeklungen ist. Dabei werden verschiedene technische Mittel angewendet, je nachdem, um welche Station des Brennstoffkreislaufes es sich handelt: Reaktorkern, Lagerbecken der abgebrannten Brennelemente oder Wiederaufarbeitungsanlage. Einen Überblick über die Stationen des Brennstoffkreislaufes mit Angabe der auftretenden Mengen gibt Bild 1. Für ein Kernkraftwerk der heute üblichen Größe von 1 300 MW elektrischer Lei-

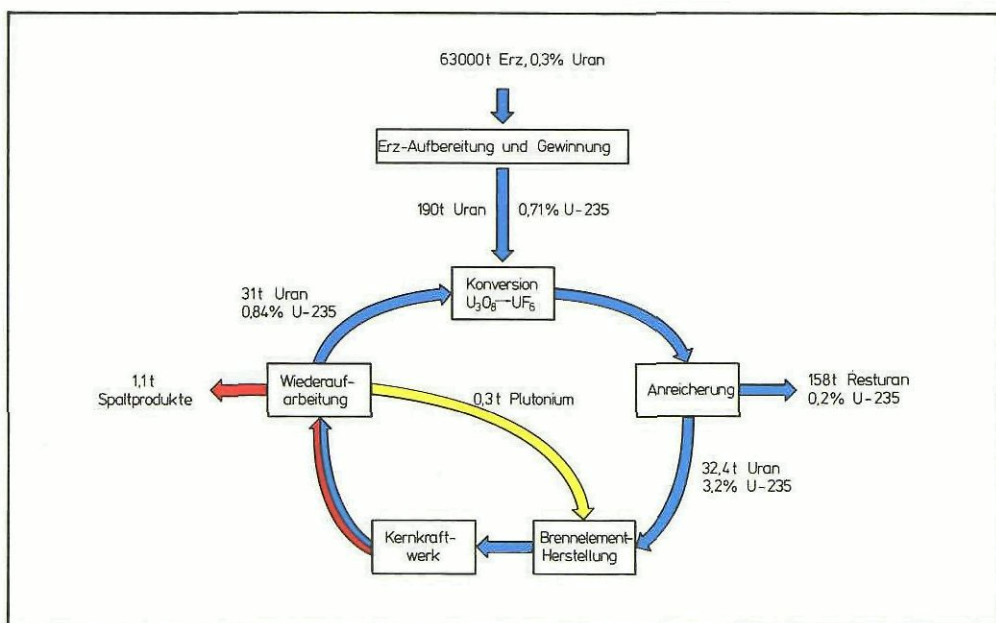
stung müssen jährlich frische Brennelemente mit rund 32,4 t angereichertem Uran bereitgestellt werden. Nach etwa 3 Jahren Betriebszeit enthalten dann die abgebrannten („verbrauchten“) Brennelemente noch 31 t Uran und rund 1,1 t Spaltprodukte. Ein Teil dieser Spaltprodukte – rund 180 kg – ist gasförmig, wiederum davon aber nur eine kleine Menge radioaktiv, z.B. nach einer Kühlzeit der Brennelemente von einem Jahr etwa 875 g.

Die Aufgabenstellung für die Zurückhaltung der flüchtigen radioaktiven Substanzen ist im Reaktor grundsätzlich anderer Natur als in der Wiederaufarbeitung. Im Reaktor muß vor allem die sehr hohe, aber kurzlebige Radioaktivität beherrscht werden. Da die metallischen Hüllrohre nur einen extrem kleinen Anteil der radioaktiven Stoffe austreten lassen, ist der Anteil der langlebigen Isotope hier ohne Bedeutung. Bei der Wiederaufarbeitung dagegen müssen nur noch die langlebigen Nuklide beachtet werden, im Verein mit den bereits inaktiven Nukliden treten jedoch relativ große Mengen auf, die aus dem Abgas abgetrennt und zurückgehalten werden müssen.

2. Abgasbehandlung im Kernkraftwerk

Die Abgasbehandlung beim Betrieb eines Kernkraftwerks soll hier nur kurz wiedergegeben werden, Einzelheiten sind z.B. in^[1] behandelt. Die Spaltprodukte werden fast vollkommen in

Bild 1:
Schema des Brennstoffkreislaufes mit Mengenabgaben, bezogen auf die jährliche Nachladung eines 1 300 MW_{el} Kernkraftwerks mit Druckwasserreaktor



der Brennstoffmatrix und durch die Brennelementhülle zurückgehalten. Sobald aber auch nur kleinste Schäden wie z.B. Haarrisse an einer Hülle auftreten, treten vornehmlich die gasförmigen und leicht flüchtigen Spaltprodukte, die sich im Spalt zwischen Hülle und Brennstoff und in den Brennstoffstabenden angesammelt haben, in das Kühlmittel über. So wird bei Sicherheitsbetrachtungen in der Regel angenommen, daß bis zu 0,5 % der Brennelemente undicht werden, ein Wert, der in der Praxis wesentlich unterschritten wird^[2]. Zusätzlich treten Spaltprodukte im Kühlmittel auf, die aus einer äußeren, bei der Brennelementherstellung nicht vollständig vermeidbaren, Verunreinigung der Brennelementhülle mit Brennstoff herrühren. Aktivierungsprodukte entstehen vornehmlich im Kühlmittel und in den Strukturmaterialien des Reaktorkerns. Von Bedeutung sind die Spaltprodukte Kr, Xe und J und die Aktivierungsprodukte von N und O. Im Kernkraftwerk Gundremmingen wurde z.B. für das Nuklid Xe-133 – das mit einer relativ langen Halbwertszeit von 5,3 d maßgebende Bedeutung hat – eine Aktivitätsaustrittsrate von 5 µCi/s · MW_{th} gemessen. Für die Austrittsrate aller Kr- und Xe-Isotope wird ein normierter Wert von rund 200 µCi/s · MW_{th} angegeben^[3]. Damit die Radioaktivität im Kühlmittel nicht zu hoch ansteigt, wird es ständig gereinigt. Die gasförmigen Elemente werden durch Entgasen des Kühlmittels entfernt und gelangen dann in die Abgasanlage. Im genannten Kraftwerk ist z.B. die Abgasanlage für einen Aktivitätsanfall von 1,65 Ci/s ausgelegt. Die maximal zulässigen Abgaberaten über den Abluftkamin des Kraftwerkes betragen für radioaktive Gase 225 Ci/h, für Aerosole 0,325 Ci/h und für Jod-131 0,0025 Ci/h. Bei Überschreiten dieser Maximalwerte muß die Leistung des Kraftwerkes reduziert werden.

Hauptmerkmal einer Abgasanlage im Kernkraftwerk sind die Maßnahmen, die eine Verzögerung des Austritts der radioakti-

ven Bestandteile bewirken. Kleine Verzögerungszeiten bis 30 min können bereits durch lange Verzögerungsleitungen oder Gassammelbehälter erreicht werden. Da heute Rückhaltezeiten bis zu einigen Tagen notwendig sind, werden stetig durchströmte Aktivkohlebetten mit einigen Tonnen Aktivkohle eingesetzt. Durch Sorptions- und Desorptionsvorgänge wandern die schweren Gase Krypton und Xenon wesentlich langsamer durch das Bett als die stets leichteren Trägergase wie Luft, Argon, Helium. Nach 30 Tagen Rückhaltezeit ist die Aktivität der verbleibenden Xenonisotope und die des Kr-85 etwa gleich groß. Eine wesentlich weitere Verringerung der Aktivität im Abgas könnte dann nur noch durch eine Abtrennung des Kr-85 erreicht werden, da dieses Isotop eine Halbwertszeit von 10,8 a hat.

3. Rückhaltung der radioaktiven Schadstoffe in der Wiederaufarbeitungsanlage^[4]

3.1 Allgemeines

Nach frühestens 200 Tagen Lagerzeit, die heute in aller Regel wesentlich überschritten wird, werden die abgebrannten Brennelemente wiederaufgearbeitet. Zu diesem Zeitpunkt ist die Radioaktivität der flüchtigen Spaltprodukte sehr stark abgeklungen^[5]. Bild 2 verdeutlicht den Zusammenhang. Nach etwa einem Jahr Abklingzeit ist von den gasförmigen und leicht flüchtigen Radionukliden nur noch die Radioaktivität des Kr-85, H-3, C-14 und des J-129 von nennenswerter Bedeutung. Mit Ausnahme von Tritium, das zu HTO oxidiert wird, gelangen diese Nuklide bereits beim ersten Teilschritt der Wiederaufarbeitung, dem Zerkleinern der Brennelemente und

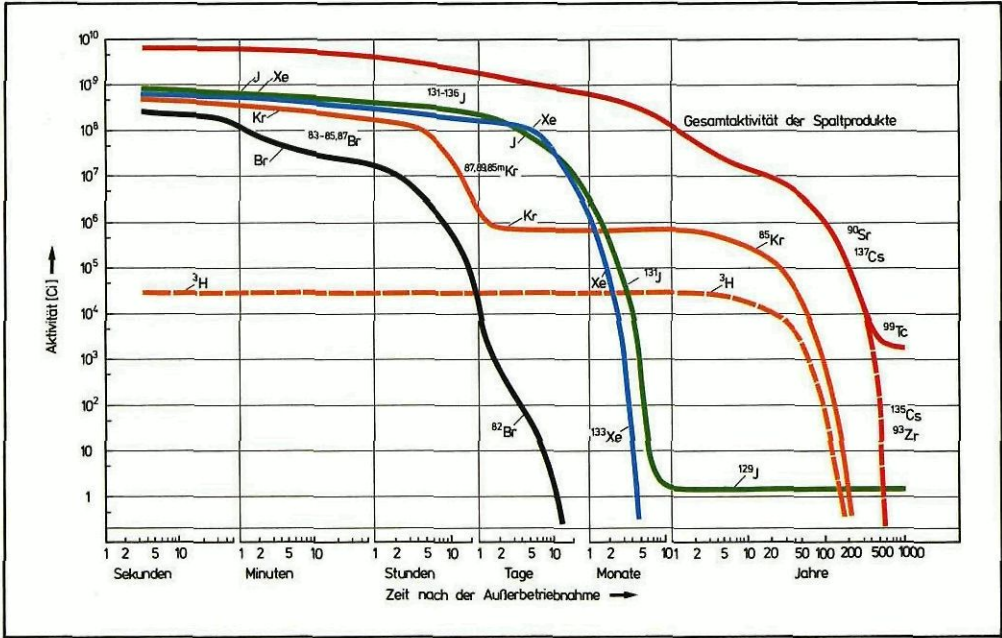


Bild 2: Abklingen der flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte aus einem 1000 MW₃₁ Kernkraftwerk

Nuklid bzw. Substanz	Halbwertszeit [a]	max. Zerfallsenergie [MeV]	Chemische Spezies im Abgas	Aktivität im ungereinigten Abgas [Ci/a]	gesamte Elementmenge [kg/a]
Tritium ³ H (T)	12,3	0,018	HTO (HT)	10 ⁶	geträgert
Kohlenstoff ¹⁴ C	5,7 · 10 ³	0,16	CO ₂	1100	geträgert
Edelgas ⁸⁵ Kr	10,8	0,67	Kr	16 · 10 ⁶	535
Halogen ¹²⁹ J	1,7 · 10 ⁷	0,2	J ₂ (RJ)	57	388
α-Strahler			Aerosole	200	} 14
β-Strahler			Aerosole	3 · 10 ⁴	

Tabelle 1: Zusammenstellung der flüchtigen radioaktiven Schadstoffe im Auflöserabgas einer Wiederaufarbeitungsanlage mit einem Jahresdurchsatz von 1400 t Kernbrennstoff.

dem Auflösen des freigelegten Brennstoffs, bevorzugt ins Abgas. In den heutigen relativ kleinen Wiederaufarbeitungsanlagen werden die radioaktiven Nuklide Kr-85, H-3 und C-14 noch nicht zurückgehalten; sie gelangen über den Abgaskamin in die Umgebungsluft. Dagegen soll in den zukünftigen Großanlagen der größte Teil der gasförmigen Radionuklide aus der Anlagenabluft abgetrennt und gelagert werden. Die Tabelle 1 gibt einen Überblick über die in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage anfallenden Mengen und über einige Kennwerte der flüchtigen Schadstoffe^[6]. In den folgenden Abschnitten sind für die wichtigsten flüchtigen Schadstoffe weitere charakteristische Merkmale und die Möglichkeiten für die Zurückhaltung zusammengestellt.

3.2 Tritium (H-3)

Tritium, das im Reaktor durch ternäre Spaltung und durch (n,T)-Reaktionen an leichten Kernen entsteht, verbleibt zu über 99 % im Brennelement und gelangt somit praktisch vollkommen in die Wiederaufarbeitungsanlage. Dort tritt es auf als HTO, und zwar zum größten Teil in der Lösung des Auflösers und zum kleineren Teil in der mit Wasserdampf gesättigten Abluft des Auflösers. Die Zurückhaltung der relativ kleinen Tritiummenge aus der Abluft kann somit durch Trocknen der Abluft erfolgen; wesentlich wichtiger und aber auch schwieriger ist die Erfassung des Tritiums in den wässrigen (und organischen) Stoffströmen der Wiederaufarbeitungsanlage. Hier versucht man durch Rezyklieren des wässrigen Arbeitsmediums und durch konsequente Erfassung aller H₂O enthaltenden Stoffströme das Tritium von der Umgebung fernzuhalten. Der unvermeidbare wässrige Abfall muß dann gelagert bzw. kontrolliert beseitigt werden. Eine Abtrennung des Tritiums aus dem Wasser durch Isotopentrennung ist nach dem Stand der Technik zu aufwendig. Global gesehen ist die Zurückhaltung des Tritiums heute noch kein Problem. Die derzeitige radioaktive Ganzkörper-Belastung beträgt durch Tritium aus natürlichen Quellen etwa 10^{-3} mrem/a und aus den Kernwaffentests herührend etwa 10^{-2} mrem/a. Erst im Jahr 2000 würde die radioaktive Belastung von Tritium aus den Wiederaufarbeitungsanlagen dem Wert aus natürlichen Quellen entsprechen. Die Notwendigkeit einer H-3 Zurückhaltung ergibt sich vielmehr aus der lokalen Schadstoffbelastung in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage. Ohne Rückhaltung tritt rechnerisch am Hauptbeaufschlagungspunkt in der Umgebung einer großen Anlage eine maximale Strahlenbelastung von 2 mrem/a durch das Tritium in der Abluft auf und zusätzlich könnte maximal eine ähnlich große Belastung durch das Abwasser entstehen^[2].

3.3 Kohlenstoff-14

C-14 ist ein Aktivierungsprodukt. Das Nuklid entsteht im Leichtwasser-Reaktor vor allem aus den Stickstoffverunreinigungen durch eine (n,p)-Reaktion an N-14. Im graphit-moderierten Hochtemperatur-Reaktor ist die Hauptbildungsrate der Neutroneneinfang des C-13. Eine weitere C-14 Quelle ist die (n, α)-Reaktion des O-17. C-13 und O-17 wiederum entstehen aus einer (n, γ)-Reaktion der C-12 bzw. O-16 Isotope.

Bei der Auflösung des Brennstoffs in Salpetersäure wird C-14 zu ¹⁴CO₂ oxidiert und kann dann in die Biosphäre gelangen. Global ist die daraus resultierende Gonadendosis von z.Z. 10^{-3} mrem/a wesentlich kleiner als die aus der natürlichen C-14 Bildung (und aus den Bombentests) herrührende Gonadendosisrate von etwa 0,5 mrem/a. Wegen der hohen Freisetzung von ¹²CO₂ durch die Verbrennung von Kohle, Öl und Gas nimmt z.Z. die C-14 Konzentration in der Atmosphäre sogar ab und damit auch der C-14 Gehalt der Nahrungsmittel, der für die Belastung durch Ingestion ausschließlich von Bedeutung ist.

Von größerer Bedeutung als die globale C-14 Konzentration in der Atmosphäre ist die mögliche lokale Strahlenbelastung, besonders bei einer Aufarbeitung von Graphit-Brennelementen. In diesem Falle werden maximale Gesamtkörperdosisraten von über 60 mrem/a errechnet^[7]. Um diese Belastung auszuschließen, müßte der gesamte Kohlenstoff der Graphit-Brennelemente zurückgehalten werden. Dieses Problem ist bei der Aufarbeitung von Brennelementen mit Metallhüllen wesentlich kleiner. Zum einen fällt hier nur 1/3 der C-14 Menge an und zum anderen kann die kleine Menge ¹⁴CO₂ recht einfach durch Molsiebe, Ausfrieren oder andere Techniken zurückgehalten werden.

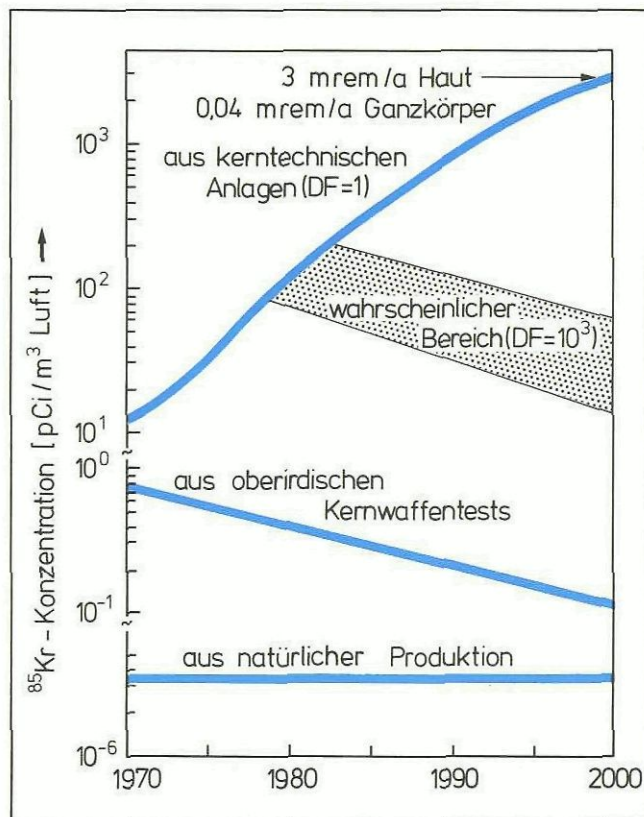


Bild 3:
Globale Kr-85-Konzentration bis zum Jahr 2000 aus natürlichen und künstlichen Quellen

3.4 Krypton-85

Kr-85 ist mit einer Halbwertszeit von 10,8 Jahren das einzige Nuklid der Spaltedelgase, das nach einer Brennelementlagerung von einem Jahr noch radioaktiv ist. Da das Edelgas Krypton nicht in den Körper aufgenommen wird und das Nuklid Kr-85 praktisch ein reiner β -Strahler ist, wird primär die Haut direkt belastet; 1 pCi Kr-85/m³ Luft hat $1,3 \cdot 10^{-3}$ mrem/a Hautdosis zur Folge. Ohne Kr-85-Rückhaltung könnte die maximale Dosisbelastung in der Umgebung einer großen Wiederaufarbeitungsanlage etwa 20 bis 40 mrem/a erreichen. Die globalen Auswirkungen einer Kr-85 Freisetzung können ebenfalls nicht vernachlässigt werden. Aus natürlicher Kr-85-Bildung (Spontanspaltung von U-238 und Reaktion der stabilen Kryptonatome mit der Höhenstrahlung) wäre in der Luft lediglich eine Kr-85-Radioaktivität von $3,5 \cdot 10^{-6}$ pCi/m³ vorhanden. Durch Freisetzungen aus der Kernindustrie hat sich dieser Wert sehr wesentlich auf 15-20 pCi/m³ erhöht. Die Freisetzungen aus den Kernwaffenexperimenten mit < 1 pCi/m³ sind dagegen recht unbedeutend. Bild 3 verdeutlicht den Zusammenhang^[3]. Im Jahr 2000 würde die globale Dosisbelastung aus der Kr-85 Freisetzung etwa 3 mrem/a betragen, sie kann durch eine Kr-85-Abtrennung und -Zurückhaltung auf einige 1/100 mrem/a reduziert werden.

Ein weiteres Problem würde die zunehmende Radioaktivität von Krypton sein, das durch Abtrennung aus der Luft gewonnen wird. Schon heute hat das so gewonnene Krypton-Gas eine Radioaktivität von $3 \cdot 10^{-5}$ Ci/Nm³ Krypton. Ohne Abtrennung müßte im Jahr 2000 mit einer Radioaktivität von $9 \cdot 10^{-4}$ Ci/Nm³ Krypton gerechnet werden. Die Bedeutung dieser Zahlen kann man erkennen beim Vergleich mit der Freigrenze für Kr-85 von 10^{-4} Ci und dem MZK-Wert für Kr-85, der $3 \cdot 10^{-6}$ Ci Kr-85/m³ Luft beträgt.

Da Krypton ein chemisch inertes Edelgas ist, kommen für seine Abtrennung nur physikalische Methoden in Frage. Zu den möglichen Verfahren, welche mit unterschiedlichem Grade bereits erprobt sind, gehören:

- **kryogene Verfahren**
Bei Normaldruck verflüssigt sich das Krypton bei -153°C und seine Erstarrung tritt bei -157°C ein. Bei tiefen Temperaturen kann daher das Krypton entweder durch Ausfrieren oder durch Rektifikation der verflüssigten Gase aus einem Gasgemisch abgetrennt werden. Verfahren dieser Art werden heute als die günstigsten eingeschätzt.
- **Absorption in Flüssigkeiten**
Die Fluorkohlenwasserstoffe zeigen eine beachtliche Löslichkeit für Krypton. Hierauf basierende Trennverfahren wurden in den USA entwickelt.
- **Adsorption an Festbetten**
Bei Raumtemperatur oder auch darunter wird das schwere Krypton stärker an z.B. Aktivkohle adsorbiert als die leichteren Trägergase. Dieser Effekt kann zur Abtrennung verwendet werden, die Trennwirkung ist aber gegenüber den oben genannten Verfahren geringer.
- **Permeation**
Die Trennung von Gasen durch halbdurchlässige Membranen wird diskutiert, für hohe Trennleistungen ist das Verfahren jedoch sehr aufwendig.

3.5 Jod-129

Bei einer Kühlzeit der Brennelemente von 200 Tagen und mehr ist von den Jod-Nukliden nur noch das extrem langlebige Jod-129 (Halbwertszeit $1,7 \cdot 10^7$ Jahre) radiotoxisch von Bedeutung. In einer Tonne abgebranntem Brennstoff sind nur 41 mCi J-129 enthalten, in den heutigen englischen und französischen Anlagen werden große Teile davon in die Atmosphäre abgegeben. Bei einer J-129 Abgabe von nur 0,57 Ci/a – dies würde bei einer modernen großen Anlage einen Rückhaltungsfaktor von mindestens 100 erfordern – muß jedoch wegen der extremen Anreicherung des Jods über den Weide-Kuh-Milch-Kleinkind-Pfad noch mit einer maximalen Dosisbelastung der Schilddrüse des Kleinkindes von 34 mrem/a gerechnet werden.

Die Zurückhaltung von Jod kann durch Adsorption an speziellen Feststoffen (wie Aktivkohle) oder auch durch Absorption in Flüssigkeiten (wie z.B. in Salpetersäure für bestimmte Sonderfälle) erfolgen. Wesentlich selektiver und zuverlässiger aber auch teurer ist die Chemisorption an mit Silbernitrat imprägniertem Trägermaterial.

3.6 α - und β -Aerosole

Bei der Zerkleinerung der Brennelemente entstehen radioaktive Staubpartikel und aus den nachgeschalteten Anlagenapparaten wie Auflöser und Destillationsgefäß werden kleine radioaktive Nebeltröpfchen ausgeatmet. Die Menge dieser primären Aerosole hängt sehr stark von der Anlagenart und der Betriebsweise ab. Ein Großteil der Aerosole wird bereits im Kondensator und in der Waschkolonne niedergeschlagen,

aber etwa der 10^{-6} bis 10^{-8} Teil der nichtflüchtigen Radionuklide verläßt mit der Abluft auch diese Anlagenteile. Eine Gruppe dieser Radionuklide sind die α -Strahler, vor allem Uran und Plutonium, und die andere Gruppe die nichtflüchtigen β - und γ -strahlenden Spaltprodukte. Die Zurückhaltung der Aerosole wird durch spezielle Aerosolfiltertechniken erreicht. Dazu sind Filter mit definierter Porengröße so zu Filterbänken zusammengeschaltet, daß auch schwer abscheidbare Aerosolarten erfaßt werden.

3.7 Aufbau einer Anlage zur Rückhaltung von radioaktiven Schadstoffen aus dem Auflöserabgas

Beim Zertrennen der Brennstabhüllen mit einer Schere und beim anschließenden Auflösen des Rest-Brennstoffs werden praktisch alle flüchtigen radioaktiven Schadstoffe freigesetzt. Dabei ist es nun sehr wichtig, daß die flüchtigen Schadstoffe in diesem Prozessschritt möglichst vollkommen erfaßt werden und dadurch ihre Verschleppung über die gesamte Anlage ausgeschlossen ist. Nur dann kann mit einer effektiven Rückhaltung fast aller flüchtigen radioaktiven Schadstoffe gerechnet werden. Bild 4 zeigt ein Anlagen-Fließbild für die Reinigung des Auflöserabgases in einer großen Wiederaufarbeitungsanlage. Die Anlage ist so aufgebaut, daß zunächst die große Menge der beim Auflösungsprozeß mit Salpetersäure entstehenden Stickoxide entfernt werden, damit durch ihre hohe Konzentration und ihre chemische Reaktivität die folgenden Reinigungsschritte nicht beeinträchtigt werden. Die Reihenfolge der Stufen zur Rückhaltung der flüchtigen radioaktiven Schadstoffe ist entsprechend deren spezifischen Toxizität und chemischen Reaktivität angeordnet: zunächst die Aerosole und das Jod, daran anschließend die Abtrennung der Spalt-Edelgase.

Die Schere und der Auflöser werden mit einer bestimmten Menge Gas (in der Regel Luft, aber auch andere ausgewählte Spülgase sind denkbar) gespült. Die Spülgasmenge ist so bemessen, daß einerseits möglichst alle flüchtigen Schadstoffe aus Schere und Auflöser ausgetragen werden, aber andererseits kein unnötig großer Abgasstrom entsteht. Das Jod ist dabei die bestimmende Komponente, da dieses Element unter den flüchtigen Schadstoffen die stärkste Neigung zeigt, sich an kalten Anlagenteilen niederzuschlagen. Aus diesem Grund muß der Auflöser mit mindestens 2 Mol Trägergas pro Mol aufgelöstem Uran gespült werden. So ist z.B. bei einer Temperatur von 20°C und einem Brennstoffdurchsatz von 8 t/Tag die minimale Trägergasmenge etwa 50 m³/h. Da die Auflösung bei siedender Salpetersäure abläuft, ist das Abgas mit Wasserdampf gesättigt. Der Großteil dieses Wasserdampfes wird in einem Kondensator niedergeschlagen. Vom Kondensator und Kondensat-Abscheider strömt das Abgas weiter in eine Waschkolonne, in der die NO_x-Bestandteile unter Sauerstoffzusatz mit rezykliertem Wasser ausgewaschen werden und dadurch zum Teil zu Salpetersäure rekombinieren. Kondensat und rekombinierte Säure enthalten einen Großteil des Jods, welches wieder zurück in den Abgasstrom überführt werden muß. Dazu dient eine weitere Waschkolonne, in der entgegen der verdünnten Salpetersäure ein Teilstrom von bereits jodfreiem Abgas nach oben strömt und somit das gelöste Jod wieder in die Gasphase übertritt.

Das Abgas beider Waschkolonnen gelangt in die Aerosol-Filterbatterien, die aus einer Anzahl von Grob-, Fein- und Absolutfiltern aufgebaut sind. Vor den Absolutfiltern muß das Abgas erwärmt werden, da bereits eine Kondensation von H₂O in diesen Filtern einen unzulässig hohen Druckverlust bewirken würde.

Nach der Aerosolabscheidung wird das Abgas weiter auf 150°C erhitzt und in einem speziellen Jodfilter vom Jod befreit.

The diagram illustrates a chemical process for the separation and recycling of noble gases (Kr, Xe) from a feed stream. The process involves several stages:

- Feed and Initial Separation:** A feed stream labeled $>4 \text{ Mol/Mol U}$ Scherengas Brennelemente enters a Schere (separator). The bottom product is Brennstofflösung (fuel solution), and the top product goes to an Auflöser (dissolver).
- Dissolution and Condensation:** The Auflöser is fed with Lösesäure (dissolving acid). The output goes to a Kondensator (condenser).
- Recombination and Desorption:** The condensed stream enters a column where it meets rezykliertes Wasser (recycled water). The bottom product is rekombinierte Säure (recombined acid), and the top product goes to a Jod-Desorption column (70 °C).
- Desorption and Filtration:** The output of the Jod-Desorption column goes to an AgNO₃ Jodfilter (150 °C). The bottom product is jodfreies Desorptionsgas (iodine-free desorption gas), and the top product goes to an Aerosol-filter.
- Regeneration and Separation:** The output of the Aerosol-filter goes to a Molsieb (molecular sieve). The bottom product is H₂, and the top product goes to a NO_x + O₂ Verbrennung (400 °C) unit. The output of this unit is H₂O, and the top product goes to a Kr, Xe separation column.
- Final Products:** The Kr, Xe separation column produces Kr-85 and Xe. The top product of the Kr, Xe separation column goes to a Kr, Xe separation column, which produces Kr-85 and Xe. The bottom product of the Kr, Xe separation column goes to a Kr, Xe separation column, which produces Kr-85 and Xe.

In Bild 4 ist die Edelgas-Abtrennung schematisch durch zwei Tieftemperatur-Rektifikationskolonnen angedeutet. Bei etwa -200°C werden zunächst die beiden Edelgase

Die Tabelle 2 vermittelt eine Übersicht über die Wirkung einer Gasreinigungsanlage zur Rückhaltung der flüchtigen radioaktiven Schadstoffe bei einer geplanten großen Wiederaufarbeitungsanlage^[6]. Ausgehend vom Dekontaminationsfaktor (= Aktivität vor der Reinigung/Aktivität nach der Reinigung) der für die verschiedenen Schadstoffe durch die Reinigungsanlage erreicht werden soll, sind in der Tabelle die restlichen Schadstoff-Abgaben am Kamin und die maximal daraus resultierende Strahlenbelastung an der ungünstigsten Einwirkungsstelle aufgeführt. Die Werte gelten für eine große Wiederaufarbeitungsanlage mit einem Kernbrennstoff-Durchsatz von 1 400 t/a, d.h. für eine Anlage, die etwa 35 Kernkraftwerke mit jeweils 1 300 MW elektrischer Leistung entsorgt.

Nuklid bzw. Substanz	Dekontamina- tionsfaktor [A _{Anf.} / A _{Abg.}]	Abgabe [Ci / a]	Dosisfaktor [$\frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{Ci} \cdot \text{s}}$]	Kritisches Organ	Strahlenbelastung an ungünstigster Einwirkungsstelle [mrem / a] ^[6]
³ H	4	0,25 · 10 ⁶	0,031	Ganzkörper	0,24
¹⁴ C	20 ¹⁾	55	42	Ganzkörper	0,05
⁸⁵ Kr	20	0,80 · 10 ⁶	0,043	Haut	1,0
¹²⁹ J	100	0,57	2 · 10 ⁶	Schilddrüse	34
α-Aerosole	>1000	0,1	<10 ³	Knochen	1,9
β-Aerosole	>1000	6,5	6,4 · 10 ⁵	Ganzkörper	0,16

1) geschätzt

[7] SCHMIDT, P.C.: „Alternativen zur Verminderung der C-14 Emission bei der Wiederaufarbeitung von HTR-Brennelementen" Jül-1567 (1979)

Verfestigung radioaktiver Spaltprodukte

S. Halaszovich

Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Nachdem bei der Einführung der Kernenergie zunächst lange Zeit die Frage der Sicherheit von Kernkraftwerken diskutiert worden ist, rückte die Frage der sicheren Entsorgung dieser Kraftwerke immer stärker in den Brennpunkt öffentlichen Interesses. Unter Entsorgung versteht man die Beseitigung aller beim Betrieb von Kernkraftwerken entstehenden radioaktiven Abfälle, deren Konditionierung und sichere Endlagerung.

2. Lagerung radioaktiver Spaltprodukte in flüssiger Form

Ein wesentlicher Teilbereich der Entsorgung ist die Umwandlung der hochradioaktiven Spaltproduktlösungen in eine endlagerfähige Form. Bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Brennelementen in der Wiederaufarbeitungsanlage fallen zunächst Lösungen an. In der Eingangsstufe einer solchen Anlage werden die Brennelemente aufgelöst. Sie enthalten, wie im Vortrag: „Die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen“ ausführlich dargestellt, neben dem noch nicht verbrauchten spaltbaren Material und Brutmaterial die während des Reaktorbetriebes entstehenden Spaltprodukte und Aktiniden. Daneben geht eine geringe Menge des Strukturmaterials ebenfalls in Lösung. Nach der Abtrennung der Spalt- und Brutstoffe in der ersten Extraktionsstufe verbleiben die übrigen als Abfall in der wässrigen Lösung, für die sich die Bezeichnung „Spaltproduktlösung“ eingebürgert hat.

Der Volumenanteil dieser Lösung macht nur etwa 5 % der Gesamtmenge des radioaktiven Abfalls aus, es ist aber ca. 98 % der gesamten Radioaktivität in ihr konzentriert^(1,2). Dieser hochradioaktive Abfall kann nicht in flüssiger Form endgelagert werden. Den Grund dafür erkennt man sofort, wenn man sich die Eigenschaften dieser Abfalllösung und den Zeitraum, für den sie wegen ihrer Gefährlichkeit aus dem Biozyklus ausgeschlossen werden muß, vergegenwärtigt.

Da es sich um eine Flüssigkeit handelt, könnte sie bei einem Unfall versickern oder versprüht werden und sich im Grundwasser und in der Atmosphäre ausbreiten:

- ihre spezifische Radioaktivität kann bis zu 1 000 Ci/dm³ betragen
- durch die Zerfallswärme, die ca. 4 W/dm³ beträgt, erhitzt sie sich selbst
- durch Radiolyse werden Wasserstoff und Sauerstoff in ihr freigesetzt, die explosive Gasmischungen bilden können

- die Lösung ist korrosiv, da sie 2-5 Mol/dm³ Salpetersäure enthält
- ihr Salzgehalt beträgt ca. 175 g/dm³
Sie enthält ca. 12 g/dm³ ungelöste Bestandteile.

Um diese Flüssigkeit sicher lagern zu können, muß eine Reihe von Sicherheitsmaßnahmen getroffen werden:

- sie muß in Edelstahlbehälter eingeschlossen werden
- die Umgebung muß durch Strahlenabschirmung geschützt werden
- die Behälter müssen gekühlt werden, um ein ungewolltes Eintrocknen der Lösung durch die Selbsterhitzung zu verhindern
- sie müssen belüftet werden, um das Entstehen explosiver Gasmischungen zu vermeiden

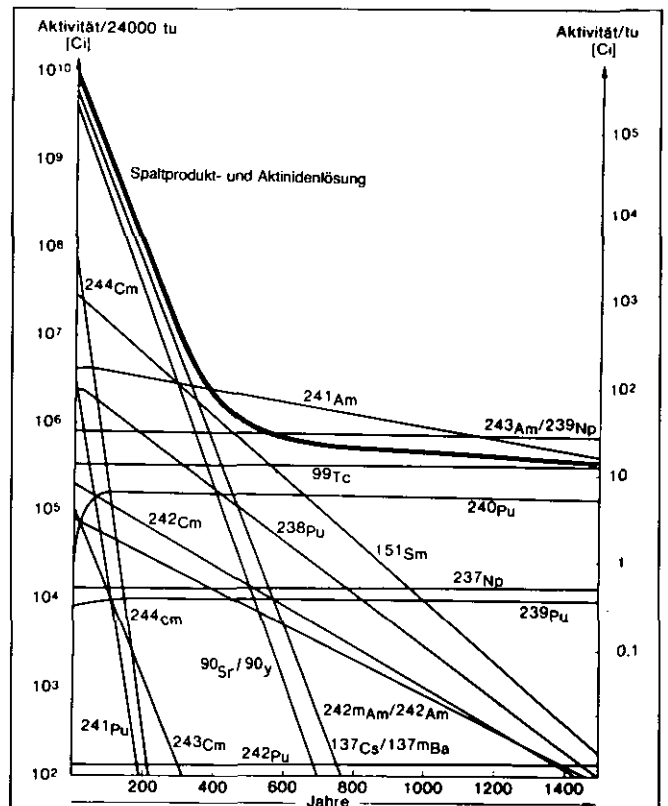


Bild 1:
Verlauf der Radioaktivität der Spaltprodukt- und Aktinidenlösung über die Zeit und die wichtigsten darin enthaltenen Isotope

* Diese Angaben gelten für LWR (Leichtwasser-Reaktor) Brennstoff mit einem Abbrand von 36 000 MWd/t nach einer Kühlzeit von 6 Jahren, wie sie gegenwärtig Auslegungsberechnungen zugrunde gelegt werden.

- die Lösung muß gerührt werden, um die Sedimentation der ungelösten Stoffe zu unterbinden
- die Behälter müssen, für den Fall einer Leckage, in Auffangwannen aufgestellt werden
- Reservebehälter und Umfüllvorrichtungen müssen bereitgehalten werden.

Wie man sieht, erfordert eine solche Flüssiglagerung aktive Maßnahmen zur Überwachung und Instandhaltung. Sie wird für die Zwischenlagerung tatsächlich praktiziert und ist für einen Zeitraum von 20-50 Jahren akzeptabel. Auch wenn man berücksichtigt, daß die spezifische Wärmeleistung der Lösung in dieser Zeit auf einen Bruchteil, nämlich auf ca. 1 W/dm³ absinkt, und daß man die Säure neutralisieren könnte, verbietet die mit der Mobilität verbundene Gefahr die Lagerung in flüssiger Form über Zeiträume, wie sie für die Endlagerung erforderlich sind.

Eine Vorstellung darüber gewinnt man, wenn man das Zerfallsverhalten der einzelnen Isotope betrachtet (Bild 1).

Die Radioaktivität der Abfälle wird zunächst durch ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs bestimmt. Sie sinkt daher in den ersten 400 bis 500 Jahren mit einer Halbwertszeit von etwa 30 Jahren relativ steil ab. Danach überwiegen die Aktiniden mit langer Halbwertszeit. Diese Abfälle müssen daher etwa 1 Million Jahre von der Biosphäre ausgeschlossen werden.

3. Verfestigung radioaktiver Spaltprodukte

3.1 Anforderungen an die Verfestigungsprodukte

Es ist offensichtlich, daß sich nur ein solches Produkt für die Endlagerung eignet, dessen sicherer Ausschluß ausschließlich durch passiv wirkende Barrieren zu erreichen ist.

Dieses Produkt müßte folgende Anforderungen erfüllen:

- Es müßte schwer verteilbar sein
- ein geringes Volumen, sowie eine gute Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukte und die übrigen Anfallbestandteile haben
- beständig gegen Wärme und radioaktive Strahlung sein
- sich chemisch neutral verhalten
- geringe Wasserlöslichkeit haben
- und es müßte mit den zur Verfügung stehenden Mitteln herstellbar sein.

3.2 Verfahren zur Verfestigung der Spaltprodukte

Unter Berücksichtigung der Herstellbarkeit wird Glas mit einem Spaltproduktgehalt bis maximal 20 Gew.-% allgemein als akzeptables Endlagerprodukt anerkannt. Für seine Herstellung ist international eine Reihe von Verfahren entwickelt worden. Von der Lösung ausgehend, durchläuft das Produkt bis zu seiner Verglasung bei allen diesen Verfestigungsverfahren grundsätzlich die gleichen Stufen, nämlich:

- Zerstörung der freien Säure und der Nitrate (Denitrirung)
- Eindampfen
- Zugabe der Glasbildner
- Trocknen
- Kalzinieren
- Schmelzen

Die Umsetzung des an sich einfachen Vorganges der Verfestigung in die Technik wird entscheidend durch die Tatsache erschwert, daß die Apparaturen fernbedient hinter einer starken Strahlenabschirmung betrieben werden müssen. Unter diesem Gesichtspunkt versprechen einfache Verfahren den meisten Erfolg. Darüber allerdings, was ein einfaches Verfahren sei, gibt es unterschiedliche Meinungen. Nach der einen ist ein Verfahren einfach, wenn alle Prozeßschritte in einem Behälter ablaufen. Dies bedeutet einfache Apparatur. Nach der gegenteiligen Meinung ist ein Verfahren einfach, wenn jeder Schritt entkoppelt in einer separaten Einheit ausgeführt wird, weil dies eine einfache Prozeßkontrolle ermöglicht. Diese beiden Vorschläge sind die Extreme einer Palette angebotener Lösungen, die in den Tabellen 1 bis 3 vorgestellt werden.

In den USA wurden, nachdem in verschiedenen Forschungszentren unterschiedliche Verfahrensvarianten entwickelt worden waren, die drei aussichtsreichsten in einer gemeinsamen Demonstrationsanlage mit dem Namen "Waste Solidification Engineering Prototypes" (WSEP) zusammengefaßt (Tab. 1). Zu den Gläsern sei als Erklärung gesagt, daß zunächst zwei Glassorten Verwendung fanden, eine auf Phosphor- und die andere auf Siliziumbasis.

Die erste Verfahrensvariante sieht die Spaltproduktverfestigung in einem Schritt vor. Es ist ein sogenanntes "Pot"-Verfahren. Bei ihm wird das beheizte Endlagergefäß mit Abfalllösung, die nicht vorbehandelt wird, gefüllt. In gleichem Maße wie die Flüssigkeit eindampft, wird weiter zudosiert, um eine konstante Füllhöhe zu halten, bis die ganze Füllung eingetrocknet ist. Das Trockene wird dann bei ca. 900°C kalziniert. Dabei werden die

Verfahren	Pot-Verfahren Kalzinat Borosilikatglas	WSEP (USA) Sprühkalzinierung Phosphatkeramik Borosilikatglas	Phosphatglas-Verfahren	WFP (USA)
Verfahrensschritte	Kalziniieren und Schmelzen (Endlager- Kokille aus Edelstahl)	Sprühkalzinierung (Elektr. Heizung, Treiblufft) Schmelzen (Platinschmelzer) Abstich in die Endlagerkokille	Konzentrierung und destillative Denitrierung Kalzinieren und Schmelzen (Platinschmelzer) Abstich in die Endlagerkokille	Wischblatt- verdampfer Sprühkalzinierung (Elektr. Heizung, Treiblufft) Wirbelbett- kalzinierung (Direkt beheizt durch Kerosin, Treiblufft) Schmelzen (Keramischer Schmelzer) Abstich in die Endlagerkokille

Tabelle 1 : In den USA entwickelte Verfahren zur Spaltproduktverfestigung (3,4)

Nitrate thermisch weitgehend zerstört und in Oxide umgewandelt. Durch Zugabe von Glasbildnern zu der Speiselösung kann man erreichen, daß das Endprodukt anstelle eines Kalzinates bei erhöhter Temperatur zu einem Glas verschmilzt.

Das Glas kann auch nach der sog. "rising-level" Methode erschmolzen werden. Hierbei wird das Endlagergefäß auf Schmelztemperatur vorgeheizt und die mit Glasbildnern vermischte Abfalllösung langsam eindosiert. Nach Trocknung und Kalzinierung bildet sich unten eine flüssige Glasphase, die durch eine Schicht aus trockenem Kalzinat bedeckt ist. Darüber befindet sich die Wasserphase. Die drei Zonen wandern langsam nach oben, bis das Gefäß gefüllt ist.

Die zweite in der Tabelle 1 gezeigte Variante ist ein zweistufiges Verfahren. Die salpetersaure Spaltproduktlösung wird, nachdem ein Teil der Glasbildner zugesetzt worden ist, in einen beheizten Turm eingesprüht. Hier werden die Tröpfchen bei ca. 600°C entwässert und zu festen Oxidpartikeln kalziniert, wobei die Nitrate thermisch zersetzt werden. Ein Teil des Kalzinates fällt direkt in das Schmelzgefäß, ein Teil wird an Filtern abgeschieden, die periodisch zurückgeblasen werden, so daß auch dieser Anteil in das Schmelzgefäß gelangt. Glasfritte wird separat in die Schmelze eindosiert. Das geschmolzene Glas kann entweder kontinuierlich durch einen Überlauf oder chargenweise durch ein Einwegventil in den Endlagerbehälter abgelassen werden. In der Versuchsanlage wurde das Phosphatglas wegen der enormen Korrosivität der Schmelze in einem Platingefäß erschmolzen.

Mit der dritten Variante wurde die Möglichkeit, Spaltprodukte ohne Trockenstufe kontinuierlich in ein Phosphatglas zu überführen, untersucht. Die Spaltproduktlösung wird in einem Verdampfer unter Zugabe von Phosphorsäure als Glasbildner vorkonzentriert. Dabei verdampft freie Salpetersäure, und ein Teil der Nitrate wird thermisch zersetzt. Das dickflüssige Ausgangsprodukt gelangt in einen Schmelztiegel, in dem bei ca. 1100-1150°C zunächst die endgültige Entwässerung und die Umwandlung der Nitrate in Oxide erfolgt und dann das Trockene zu einem Phosphatglas schmilzt. Die Schmelze wird über einen Überlauf in das Endlagergefäß abgelassen. Auch hier wurde ein Platinschmelzer benutzt.

Die WSEP-Versuchsanlage wurde, nachdem sie längere Zeit mit simuliertem, nicht radioaktivem Material getestet worden ist, mit echten Spaltproduktlösungen betrieben.

Unter Berücksichtigung der gewonnenen Erfahrungen und der Entwicklungsarbeiten, die in der Zwischenzeit anderenorts durchgeführt wurden, wurde ein weiterführendes Programm mit dem Namen "Waste Fixation Program" (WFP) aufgestellt. In seinem Rahmen wurde die Weiterentwicklung und Erprobung einzelner Komponenten fortgeführt.

Durchgesetzt hat sich die Kombination Sprühkalzinierung-keramischer Schmelzer. Bei dem keramischen Schmelzer handelt es sich um eine Schmelzwanne aus korrosionsfestem keramischem Material, in der das Glas durch direkten Stromdurchgang zwischen Elektroden geschmolzen wird. Der Schmelzer ist kippbar, die Schmelze wird über einen Überlauf in die Endlagerbehälter abgefüllt.

In Europa haben neben der Bundesrepublik Frankreich und England Verfestigungsverfahren entwickelt (Tab. 2).

In Frankreich wurde zunächst das PIVER-Verfahren entwickelt. Es ist ein Pot-Verfahren, wie es bereits vorgestellt wurde. Das neuere, welches wegen seines fortgeschrittenen Entwicklungsstandes auch für das deutsche Entsorgungszentrum ausgewählt wurde, ist das AVM-Verfahren. Bei ihm handelt es sich auch um ein zweistufiges Verfahren.

Die salpetersaure Spaltproduktlösung wird in einen elektrisch beheizten Drehrohrofen, der auf ca. 500°C gehalten wird, eindosiert. Sie wird getrocknet und das Trockenprodukt kalziniert, wobei die Nitrate unter Oxidbildung teilweise zersetzt werden.

Ver-fahren	Piver (Frankreich)	AVM (Frankreich)	Fingal/Harvest (England)
Verfahrensschritte	Evtl. Konzen-trierung		
	Kalziniieren und Schmelzen (Edelstahl-Schmelzer)	Drehrohr-kalziniierung (Elektr. Heizung) Schmelzen (Edelstahl-Schmelzer, Keramischer Schmelzer Glas direkt induktiv beheizt)	Kalziniieren und Schmelzen (Endlagerkokille aus Edelstahl)
	Abstich in die Endlagerkokille	Abstich in die Endlagerkokille	

Tabelle 2: In Frankreich und England entwickelte Verfahren zur Spaltproduktverfestigung (5, 6, 7, 8)

Ein frei beweglicher Brecher in dem Rohr und ein stark ausga-sender Zusatz verhindern das Festbacken des Kalzinates an der Rohrrinnenwand. Das Kalzinat fällt kontinuierlich in den Schmelztiegel, in den ebenfalls ein fertiges Glasgranulat ein-dosiert wird. Die Schmelze wird direkt induktiv beheizt, die Schmelztemperatur beträgt ca. 1250°C. Das fertige Glas wird von Zeit zu Zeit in das Endlagergefäß abgelassen.

Das PIVER-Verfahren wurde mit radioaktivem Material gete-stet, die AVM-Versuchsanlage absolvierte im vergangenen Jahr die ersten Heißversuche, d.h., Versuche mit echtem ra-dioaktiven Material.

FINGAL und HARVEST sind beides in England entwickelte Pot-Verfahren nach dem bereits vorgestellten Prinzip. HAR-VEST ist die Weiterentwicklung des FINGAL-Verfahrens, mit dem ebenfalls bereits radioaktiver Abfall verfestigt wurde.

In der Bundesrepublik wurden drei Verfahren entwickelt (Tab. 3).

Ver-fahren	VERA (BRD, Karlsruhe)	PAMELA (BRD, GBAG)	FIPS (BRD, Jülich)
Verfahrensschritte	Chemische Denitrierung	Konzentrierung und chem. Denitrierung	Konzentrierung und chem. Denitrierung
	Sprühkalzinie-rung (Direkte Dampfheizung, Treibdampf)		Walzentrock-nung (Dampfheizung)
	Schmelzen (Direkt beheizter keramischer Schmelzer)	Kalziniieren und Schmelzen (Direkt beheizter keram. Schmelzer)	Schmelzen (Endlagerbehäl-ter aus Edelstahl oder Ton-Graphit)
	Abstich in die Endlagerkokille	Glasperlen-produktion Einbetten der Glasperlen in Metall	

Tabelle 3: In der Bundesrepublik Deutschland entwickelte Verfahren zur Spaltproduktverfestigung (9, 10, 11, 12)

Das ursprüngliche VERA-Verfahren besteht aus drei Stufen:

- Chemische Denitrierung;
- Sprühkalzinierung;
- Schmelzen.

Die salpetersauren Spaltproduktlösungen werden vor der Ver-festigung mit Ameisensäure als Reduktionsmittel denitiert. In einem Verdampfer mit angeschlossenem Rückflußkühler wer-den sie zusammen mit einer für eine Charge bemessenen Ameisensäurevorlage gekocht, wobei die freie Salpetersäure

zerstört, ein Teil der Nitrate in Oxide umgewandelt, ein anderer Teil bis zum Metall reduziert wird. Die Spaltproduktlösung wird in die Säurevorlage kontinuierlich eindosiert. Eine Aufkonzentrierung findet nicht statt. Die Trocknung und Kalzinierung erfolgen bei ca. 500°C in einem Sprühkalzinator, in den die denitrierte Spaltproduktlösung mittels überhitzten Dampfes von oben eingesprüht wird. Ein Teil des Kalzinates fällt direkt in einen metallischen Schmelztiegel, ein anderer Teil wird an der Filterbatterie über dem Ofen aufgefangen und von hier periodisch in den Ofen zurückgeblasen. Das Grundglas wird getrennt in den Schmelztiegel eindosiert und verschmilzt bei ca. 1110°C mit dem Kalzinat, wobei die restlichen Nitrate thermisch zerstört werden. Das fertige Glas wird in einen Endlagerbehälter abgelassen.

Eine stark abgeänderte Variante sieht das direkte Einsprühen einer Suspension aus Spaltproduktlösung, Glaspulver und Ameisensäure in einen keramischen Schmelzer, der auch nach dem bereits erwähnten Prinzip arbeitet, vor. Die Spaltproduktlösung wird in der heißen Atmosphäre in ein Kalzinat überführt. Das Kalzinat fällt entweder auf die Schmelze oder es fliegt zu der beheizten Wand, von der es abschmilzt oder es wird auf Filtern aufgefangen und in den Schmelzraum zurückgeführt. Das Glas wird von Zeit zu Zeit in Endlagerbehälter abgelassen.

Das PAMELA-Verfahren ist für die Herstellung eines Phosphatglases entwickelt worden. Die salpetersauren Spaltproduktlösungen werden vor der Verfestigung denitriert, indem sie in einem Destillationsgefäß zusammen mit einer für eine Charge bemessenen Phosphorsäurevorlage unter Zugabe vom Formaldehyd als Reduktionsmittel gekocht werden. Die freie Säure wird zerstört, der größte Teil der Nitrate in Phosphate umgewandelt. Gleichzeitig findet eine Aufkonzentrierung statt. Am Ende der Denitrierung liegt ein dickflüssiges verglasungsfähiges Produkt vor, das direkt in den Schmelztiegel eindosiert wird. Die ursprüngliche Verfahrensvariante sah einen Schmelztiegel aus Platin vor. Hier finden die vollständige Entwässerung, Kalzinierung, Umwandlung der restlichen Nitrate und das Verschmelzen von Glas statt. Die Schmelztemperatur beträgt 900-1000°C. Die Schmelze tropft aus Düsen im Tiegelboden auf eine rotierende kalte Platte, auf der sie zu Glaskügelchen erstarrt. In einem weiteren Schritt werden die Glaskügelchen im Endlagerbehälter in eine Metallmatrix eingebettet. Auch bei diesem Verfahren wurde im Laufe der Entwicklung der Platinschmelzer durch den keramischen abgelöst.

Nach dem FIPS-Verfahren wird die Spaltproduktlösung ähnlich wie bei PAMELA zunächst denitriert, allerdings ohne Phosphorsäurezusatz, da hier ein Borosilikatglas für die Verfestigung der Abfälle gewählt wurde. Danach wird Glaspulver in die denitrierte eingeeengte Lösung eingerührt, die Suspension auf einem Walzentrockner getrocknet. Das Trockene fällt in einen vorgeheizten Schmelztiegel und wird aufgeschmolzen. Der volle Tiegel wird aus dem Ofen entnommen und ein neuer in den Ofen gestellt. Es werden also im Gegensatz zu allen anderen Verfahren Einwegtiegel benutzt, die gleichzeitig als Endlagerbehälter dienen.

Bei allen deutschen Verfahren werden die Glasblöcke getempert, um rißfreie spannungsarme Körper zu erhalten.

4. Bewertung der verschiedenen Verfestigungsverfahren

Welche Überlegungen zu der Festlegung eines Verfahrens führen, soll am Beispiel des in der KFAJülich entwickelten Verfahrens FIPS gezeigt werden. Dazu seien die Hauptmerkmale der eben vorgestellten Verfahren genannt und kurz bewertet (Tab. 4).

Verfahren	Vorteile :	Nachteile :
Einstufig (Potverfahren)	Einfachster Apparat	Komplexer Vorgang im Schmelzer, geringer Durchsatz
Mehrstufig	Gute Prozeßkontrolle	Apparativer Mehraufwand
Keine chemische Denitrierung	Apparative Vereinfachung	Rutheniumverflüchtigung
Wirbelbett- und Sprühkalzinierung	Hoher Durchsatz der Trocknungsstufe, keine bewegten Teile	Großes Abgasvolumen, aufwendige Staubfilterung
Mechanische Trockner	Geringes Abgasvolumen, einfache Regelung	Mech. bewegte Teile in der Heißen-Zelle
Dauerschmelzer	Hoher Durchsatz	Schwierige Überwachung
Einwegtiegel	Einfache Überwachung	Geringer Durchsatz
Direkt beheizter keram. Schmelzer mit Flüssig-einspeisung	Apparative Vereinfachung, hoher Durchsatz, lange Lebensdauer	Komplexer Vorgang im Schmelzer, Thermoschockempfindlichkeit, großes Spaltprodukt-Inventar

Tabelle 4 : Merkmale der Verglasungsverfahren

Die apparativ einfachste Lösung bieten die Pot-Verfahren. Der gesamte Prozeß der Verfestigung läuft in einem Behälter ab. Da keine zusätzlichen Gase und kein zusätzliches Wasser zur Prozeßführung benötigt werden, ist die Menge des Sekundärabfalls gering, was letztlich zur Sicherheit für die Umwelt beiträgt. Die Verfahren sind universell einsetzbar, sie können ein breites Spektrum an Spaltproduktlösungen verarbeiten. Diesen Vorteilen steht allerdings eine Reihe von Nachteilen gegenüber. Da zu Beginn der Prozesse keine chemische Denitrierung erfolgt, wird ein Großteil des Rutheniums verflüchtigt und gelangt ins Abgas. Stark eingeeengte Lösungen zeigen eine starke Neigung zum Spratzen. Die Kapazität der Verfahren ist stark eingeschränkt, weil sie diskontinuierlich arbeiten, hauptsächlich aber, weil der Durchsatz im Schmelzer durch die Verdampfungsgeschwindigkeit bestimmt wird. Die genaue Dosierung der zur Sedimentation neigenden Spaltproduktlösung ist ein großes Problem. An Dosiereinrichtungen treten immer wieder Störungen durch Ablagerungen auf. Der Vorgang im Schmelzer ist sehr komplex, da Verdampfung, Kalzinierung und Einschmelzen auf engem Raum gleichzeitig ablaufen und sich gegenseitig beeinflussen. Das erneute Anfahren des nur zum Teil gefüllten Schmelzers nach einer Zwangspause ist wegen der vorliegenden verschiedenen Phasen, Glas, Kalzinat evtl. Flüssigkeit, nicht ohne weiteres möglich.

Trotz höheren apparativen Aufwandes ist es daher sinnvoll, die Verfahrensschritte zu entkoppeln. Das geschieht, indem man die Verfestigung in zwei Stufen ausführt, nämlich in einer Trocknungs- und/oder Kalzinierungsstufe und in der darauffolgenden Schmelzstufe. Für die Trocknung und Kalzinierung ist zu wählen zwischen Apparaten ohne bewegte Teile, wie Sprüh- und Wirbelbettkalzinatoren, und mechanisch bewegten Trocknern.

Da Sprüh- und Wirbelbettkalzinatoren keine bewegten Teile aufweisen, sind sie weniger anfällig gegen mechanische Störungen. Verschleißteile sind die Einspritzdüsen. Nachteilig ist, daß große Mengen Treibgas benötigt werden. Es wird entweder Luft oder überhitzter Dampf benutzt. Die großen Volumina erfordern aufwendige Umluft- und Abluftsysteme. Der Anteil an Sekundärabfall ist relativ hoch. Der große Feinstaubanteil muß mit aufwendigen Filteranlagen vom Gasstrom getrennt werden. Der meß- und regeltechnische Aufwand ist erheblich. Mechanisch bewegte Trockner, wie der Drehtrommelkalzinator und der Walzentrockner, haben diese Nachteile nicht, aber bei

ihnen ist die Wahrscheinlichkeit einer mechanischen Störung höher anzusetzen. Bei der FIPS-Anlage fiel die Wahl auf den Walzentrockner, ein robustes Gerät, bei dem im Gegensatz zum Drehtrommelkalzinator die Trocknung zugänglich an der Außenfläche erfolgt. Er ist außerdem der einzige unter den in Betracht kommenden Trocknern und Kalzinatoren, bei dem die Suspension ohne aufwendige Dosierung in einem Kreislaufsystem einfach durch Anschlüssen aufgetragen werden kann.

Für die Gestaltung der Schmelzstufe gibt es zwei prinzipielle Möglichkeiten, nämlich die Verwendung eines Dauerschmelzgefäßes, oder das Schmelzen im Endlagergefäß. Dauerschmelzer erzielen einen höheren Durchsatz, da bei ihnen keine Ausfallzeiten durch Tiegelwechsel entstehen. Nachteilig ist, daß die Zudosierung in engen Grenzen eingehalten werden muß, um einen stationären Zustand im Schmelzer zu erhalten. Der Zustand der Dauerschmelzgefäße ist nicht einfach kontrollierbar, ein Versagen, d.h. Durchkorrodieren, kann man kaum rechtzeitig erkennen. Dieser Nachteil ist besonders bei den relativ dünnwandigen metallischen Schmelzern schwerwiegend.

Die in neuerer Zeit in Entwicklung befindlichen keramischen Schmelzer sind in dieser Hinsicht günstiger. Die speziellen keramischen Massen sind gegen Glasschmelzen widerstandsfähiger als Metalle (ausgenommen Platin). Bauartbedingt steht in den keramischen Schmelzern eine größere Glasoberfläche als Wärmeübertragungsfläche für das Einschmelzen zur Verfügung als bei den übrigen Typen. Dementsprechend ist ihr Durchsatz je Einheit größer. Allerdings ist damit auch die Oberfläche, aus der Spaltprodukte verflüchtigt werden können, relativ groß. Wesentliche Nachteile der keramischen Schmelzer liegen in der geringen Temperaturwechselbeständigkeit des Materials, in der komplizierten Fahrweise der Öfen und in dem großen Inventar an radioaktivem Material. Ihre Betriebstüchtigkeit, Lebensdauer und die Funktionsfähigkeit ihrer Notsysteme sind im Heiße-Zellen-Betrieb noch nicht nachgewiesen. Beim gegenwärtigen Stand der Technik ist es daher aus sicherheitstechnischen Überlegungen sinnvoller, eine Schmelzstufe mit Einweg-Schmelzgefäßen vorzuziehen. Während ihrer verhältnismäßig kurzen Einsatzzeit spielt die Korrosion durch die Glasschmelze keine entscheidende Rolle.

5. Stand der Entwicklung in der Bundesrepublik Deutschland

Nach der Aufzählung verschiedener technischer Möglichkeiten, die für die Umwandlung der hochradioaktiven Spaltproduktlösungen in eine sichere endlagerfähige Form entwickelt worden sind, soll abschließend ein Blick auf die gegenwärtige Situation in der Bundesrepublik folgen.

Im Gegensatz zur offiziellen amerikanischen Politik hält die Bundesregierung an der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente fest. Ein großes deutsches Entsorgungszentrum befindet sich in Planung. Der Name Gorleben ist allen bekannt. Die Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (DWK), eine Tochter der Elektrizitäts-Versorgungs-Unternehmen, ist gegründet worden, um die Planung und den Bau dieser Anlage durchzuführen.

Als Komponente dieser Anlage wurde, wie bereits erwähnt, das französische AVM-Verfahren als Referenzverfahren für die Spaltproduktverfestigung ausgewählt. Diese Entscheidung wurde getroffen, weil dieses Verfahren bisher als einziges nahezu Produktionsreife erreicht hat. Mit einer Anlage in Marcoule wurden im vergangenen Jahr die ersten Versuche mit radioaktivem Material im technischen Maßstab durchgeführt. Da man aber auf diesem Gebiet möglichst viel Erfahrung sammeln sollte, und weil in der Kerntechnik eine mehrfache Sicherheit gefordert ist, wird die Entwicklung von zwei weiteren Verfahren fortgesetzt.

Das eine ist die apparativ stark reduzierte Kombination des Karlsruher VERA-Verfahrens und des PAMELA-Verfahrens, das von der Firma GELSENBERG AG entwickelt wurde. Nach Übernahme der GELSENBERG AG durch die VEBA AG ging ihre kerntechnische Abteilung in die DWK über. Unter DWK-Regie wird nun in Belgien auf dem Gelände der EUROCHEMIC in Mol eine Versuchsanlage gebaut, mit der dort lagernde Spaltproduktlösungen verfestigt werden soll.

Die Anlage besteht im wesentlichen aus einem Denitrator und einem keramischen Schmelzer, der direkt mit flüssigem Konzentrat gespeist wird.

Das zweite Verfahren in der Weiterentwicklung ist das FIPS-Verfahren. Neben bestehenden Laboranlagen befindet sich eine zweite Heißversuchsanlage im Bau, mit der in relativ kleinem Maßstab ebenfalls echte Spaltproduktlösungen verarbeitet werden sollen.

6. Literatur

- [1] DYROFF, H., FLEISCHMANN, F.K., WITTE, H.: Radioaktive Abfälle und ihre Beseitigung, Atomwirtschaft, Jahrgang XXI, Nr. 7, Juli 1976
- [2] KRAUSE, H.: Anfall radioaktiver Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland, Atomwirtschaft, Jahrgang XXI, Nr. 7, Juli 1976
- [3] SCHNEIDER, K.J., KELLY, V.P.: Waste solidification program, Volume II: Design features of the waste solidification engineering prototypes, BNWL-968, February 1969
- [4] McELROY, J.L., BONNER, W.F., BLAIR, H.T., BJORKLUND, W.J., CHAPMAN, C.C., DIERKS, R.D., ROMERO, L.S.: Recent calcination and vitrification process accomplishment, Proc. symp. on the management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle, Vienna, March 22-26, 1976, IAEA-SM-207/68, Vienna 1976
- [5] BONNIAUD, R., LAUDE, F., SOMBRET, C.: Expérience acquise en France dans le traitement par vitrification des solutions concentrées de produits de fission, Proc. symp. on the management of radioactive wastes from fuel reprocessing, Paris, Nov. 27 – Dec. 1, 1972, OECD Paris 1973
- [6] JOUAN, A., CARTIER, R., BONNIAUD, R., SOMBRET, C.: Developpement actuel du procede de vitrification continue des solutions de produits de fission, Proc. symp. on the management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle, Vienna, March 22-26, 1976, IAEA-SM-207/27, Vienna 1976
- [7] GROVER, J.R., HARDWICK, W.H., GAYLER, R., DELVE, M.H.: The FINGAL Process, Solidification and long-term storage of highly radioactive wastes, Proc. symp. on the solidification and long-term storage of highly radioactive wastes, Richland, February 14-18, 1966, CONF-660208
- [8] MORRIS, J.B., CHIDLEY, B.E.: Preliminary experience with the new vitrification inactive pilot plant, Proc. symp. on the management of the radioactive wastes from the nuclear fuel cycle, Vienna, March 22-26, 1976, IAEA-SM-207/22, Vienna 1976
- [9] GÜBER, W.: Inaktive Pilotanlage zur Verfestigung hochaktiver Spaltproduktlösungen, Jahresbericht 1973, KFK 2126
- [10] KAUFMANN, F., KOSCHORKE, H., WEISENBURGER, S.: Keramische Schmelzanlage zur Verfestigung von HAW-Lösungen in Borosilikatglas, Atomwirtschaft, 7/8, Juli/August 1977
- [11] VAN GEEL, J., ESCHRICH, H., HEIMERL, W., GRZIWA, P.: Solidification of high-level liquid wastes to phosphate glass-metal matrix blocks, Proc. symp. on the management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle, Vienna, March 22-26, 1976, IAEA-SM-207/83, Vienna 1976
- [12] HALASZOVICH, S., LASER, M., MERZ, E., THIELE, D.: FIPS – A process for the solidification of fission product solutions using a drum drier, Proc. symp. on the management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle, Vienna, March 22-26, 1976, IAEA-SM-207/19, Vienna 1976

Eigenschaften und Endlagerung der verfestigten Abfallprodukte

R. Odoj

Institut für Chemische Technologie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Abfallarten und -mengen

Bei dem derzeitig geplanten Entsorgungszentrum für ausgediente Brennelemente aus Kernkraftwerken in Gorleben beschäftigt sich das Teilprojekt 5 mit der Abfallbehandlung. Hierunter versteht man die Überführung aller radioaktiv anfallenden Stoffe in endlagerfähige Produkte. Da die Wiederaufarbeitungsanlage nach dem derzeitigen Planungsstand für einen mittleren Jahresdurchsatz von 1 400 t Spaltstoff ausgelegt ist, fallen die festen, flüssigen und gasförmigen radioaktiven Stoffe in folgenden Mengen und Aktivitäten an

LAW (flüssig) ¹⁾	– 50 000 m ³ /a	< 10 ⁻¹ Ci/m ³
MAW (flüssig)	– 25 000 m ³ /a	10 ⁻¹ –10 ⁴ Ci/m ³
LAW (fest)	– 2 000 m ³ /a	
MAW (fest)	– 2 000 m ³ /a	
HAW (flüssig)	– 1 000 m ³ /a	> 10 ⁴ Ci/m ³

Diese Zusammenstellung verdeutlicht, daß der überwiegende Anteil an radioaktiven Abfallstoffen dem schwach- bzw. mittelaktiven Abfall zuzurechnen ist. Die Vorbehandlung der flüssigen Abfälle zielt in der Regel auf eine Verringerung des Volumens, damit auch eine Zwischenlagerung über mehrere Jahre möglich ist. Dabei wird darauf geachtet, daß der Teil der Abfälle, der nach entsprechender Behandlung wiederverwertet werden kann, in den Aufarbeitungsprozeß zurückgeführt wird. Die festen LAW- und MAW-Abfälle dagegen werden direkt in geeigneten Bindemitteln wie Zement und Bitumen fixiert und unverzüglich im Endlager eingelagert.

1.1 Niedrigaktiver Abfall (LAW)

Die Verfestigung dieser LAW-Abfallmengen erfolgt in 400- bzw. 200 l-Fässern. Dadurch wird für diese Produkte eine freie, unabgeschirmte Handhabung bei Transporten und Lagerung möglich.

Versucheinlagerungstechniken haben erwiesen, daß die Befüllung der Endlagerkammern am besten durch Abkippen der Fässer aus einem Schaufelradbagger über eine Salzboschung erfolgt (Bild 1). Die Fässer werden danach mit losem Salz abgedeckt.

Dieses Verfahren ist gegenüber einem Aufstapeln der Fässer im Hinblick auf den Zeitaufwand sowie die Strahlenbelastung des Einlagerungspersonals als optimal anzusehen.



Bild 1:
Einlagerung von verfestigten schwachaktiven Abfällen

In zunehmendem Maße fallen bei den Wiederaufarbeitungsanlagen schwachaktive Abfälle an, die schon zu so hohen Dosisleistungen an der Faßoberfläche führten, daß diese Fässer in einen Betonbehälter eingesetzt werden mußten. Hier spricht man von LAW-Fässern mit „verlorener Betonabschirmung“.

1.2 Mittelaktiver Abfall (MAW)

Konzentrate, kontaminierte und/oder aktivierte Metallteile (z.B. Brennstoffhüllrohrstücke) und sonstige feste radioaktive Abfälle, die pro 200 l-Faß Aktivitäten bis zu 10⁴ Ci haben, zählen zum MAW. Diese Abfälle sind in Bitumen oder Beton im Faß fixiert, so daß an der Faßoberfläche Dosisleistungen von maximal 10⁵ R/h gemessen werden.

Eine Einlagerung in begehbaren Kammern, wie im Falle der niedrigaktiven Abfälle, ist nicht möglich, da die Strahlenbelastung des Einlagerungspersonals viel zu hoch wäre. Die Fässer werden in Sammelbehälter, die eine zusätzliche Abschirmung darstellen, bis nach Untertage transportiert. In der Beschickungskammer wird das 200 l-Abfallfaß mittels Kran aus dem Abschirmbehälter durch ein Transportbohrloch in die darunterliegende, hermetisch abgeschlossene Einlagerungskammer abgelassen (Bild 2).

1.3 Hochaktiver Abfall (HAW)

Ein Teil der hochaktiven festen Abfallmengen, die 80 m³ Schlamm suspension pro Jahr, werden trocken gelagert bis zur späteren Abfallbehandlung. Die 800 m³ hochaktiven Brenn-

¹⁾ LAW: schwachaktiver Abfall
MAW: mittelaktiver Abfall
HAW: hochaktiver Abfall

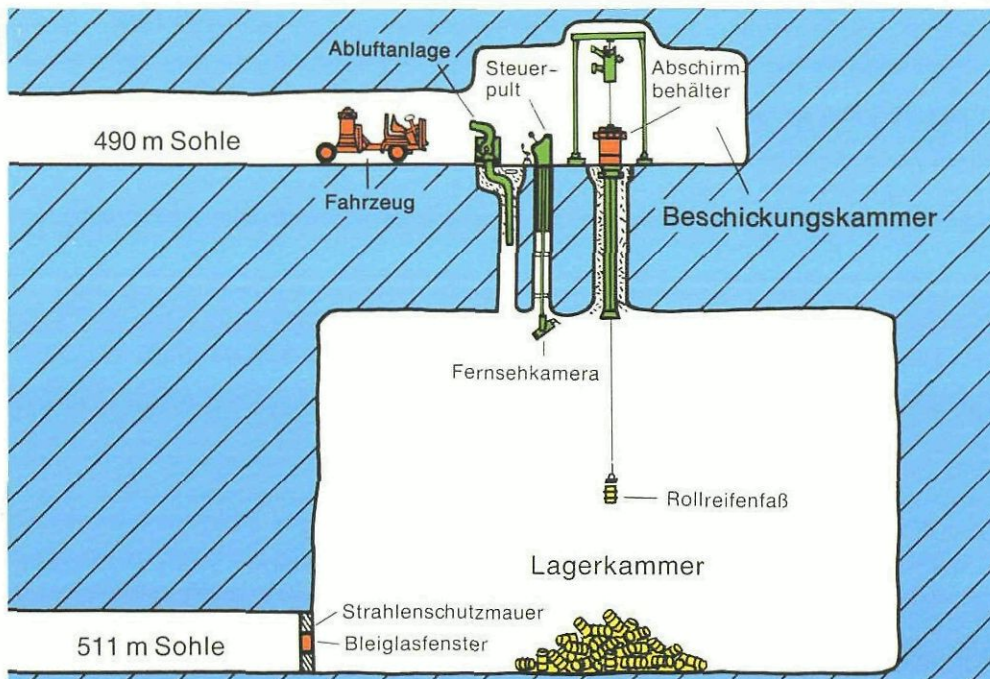


Bild 2:
Einlagerung mittelaktiver Abfälle

elementhüllen, die pro Jahr anfallen, werden gegebenenfalls unter Wasser in Containern aufbewahrt. Die Endbehandlung der festen hochradioaktiven Abfälle umfaßt die Verfahrensschritte: Übernahme der 2 m³-Container, Entwässerung, Einzementierung in den Containern und anschließende 24 h Zwischenlagerung. Nach dem Abbinden des Zementes werden die Container in Abschirmbehälter gesetzt, der Zwischenraum mit Zement vergossen sowie mit einem Abschirmdeckel verschlossen. 500 dieser 2 m³-Container fallen pro Jahr an für den festen HAW. Die Hauptschwierigkeit bei der Abfallendbehandlung liegt in der Verarbeitung des flüssigen hochaktiven Abfalls. Seine Zusammensetzung ist aus Tabelle 1 zu ersehen. (Theoretisch berechnete Zusammensetzung aufgrund des Abbrandes und der Anfangsanreicherung nach dem ORIGEN-Code.)

Die Elementvielfalt und die damit verbundene unterschiedliche Reaktivität stellen die unterschiedlichsten Anforderungen an das optimale Einbettungsmaterial.

Dieser hochaktive Abfall wird in gekühlten 1 000 m³ Tanks bei Temperaturen von ca. 60°C gelagert. Die Tanks werden zwangsbelüftet, wodurch der Lösung stets Wasser entzogen wird. Dadurch kann im Verlauf der Lagerzeit die Flüssigkeit weiter aufkonzentriert werden, soweit es die Wärmeentwicklung zuläßt.

Der maximale Salzgehalt von 225 g/l ist bei etwa 600 m³ Konzentrat erreicht, welches auch der Jahreskapazität der Verfestigungsanlage entspricht. Einige Werte sollen die in der Verfestigungsanlage zu verarbeitende Lösung charakterisieren:

Aktivitätskonzentration $\leq 1 \cdot 10^6$ Ci/m³
Wärmeleistung $< 4 \cdot 10^3$ W/m³
Pu-Konzentration 0,085 kg/m³ \triangleq 51 kg Pu/a
U-Konzentration 4,5 kg/m³ \triangleq 2700 kg U/a

Die einzelnen Schritte der Verfestigung dieses flüssigen HAW-Abfalles nach dem AVM-Verfahren, welches z.Z. das Referenzverfahren darstellt, sind in Bild 3 dargestellt.

2. Endlager

Das derzeit favorisierte Endlager befindet sich in einem Salzstock in der Nähe von Gorleben. Die geologischen Verhältnisse

Zusammensetzung des Spaltprodukt- und Aktinidengemisches einer HAW-Lsg. aus LWR-Brennstoffen

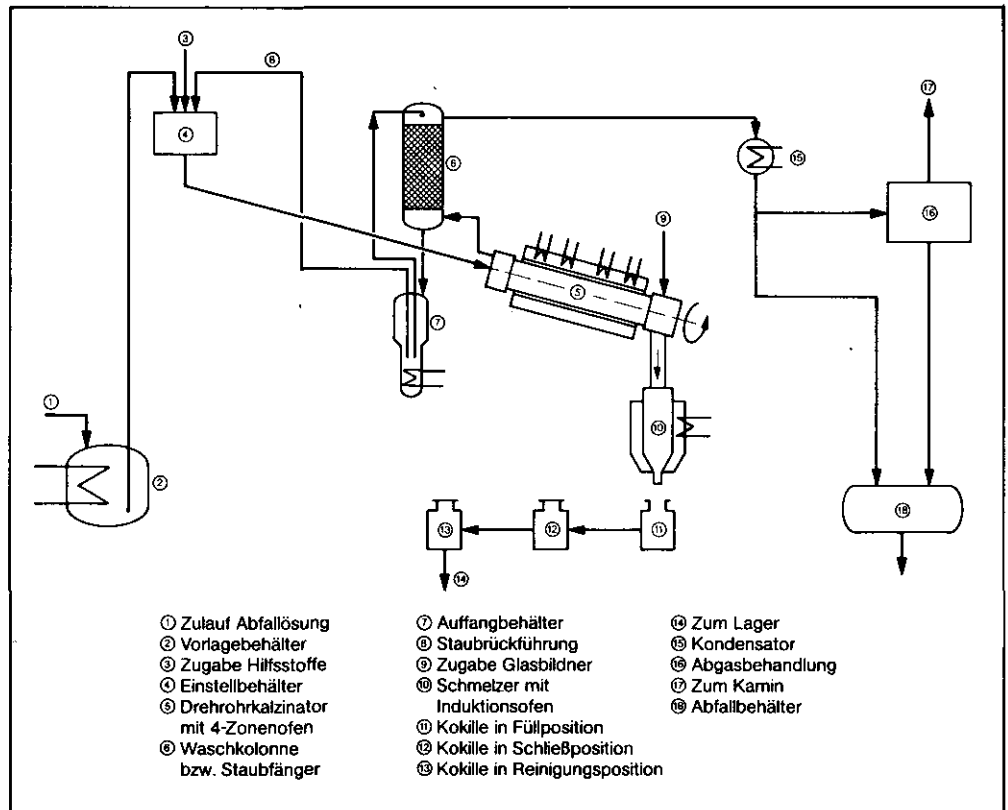
Ausgangsdaten: Abbrand 36.000 MWd/t
Kühlzeit 6 Jahre
Anfangsanreicherung 3,5 %

Me g/t	Me g/l	Me _x O _y g/l
Se 56,73	0,132	0,19 SeO ₂
Te 622,62	1,451	1,78 TeO ₂
As	$< 10^{-2}$	
Sb 13,53	0,032	0,04 Sb ₂ O ₃
Ge 0,404	$< 10^{-2}$	
Sn 55,75	0,13	0,147 SnO
In	$< 10^{-2}$	
Cd 94,46	0,22	0,25 CdO
Ag 63,7	0,15	0,16 Ag ₂ O
Pd 1544,7	3,6	4,14 PdO
Rh 411	0,96	1,18 Rh ₂ O ₃
Ru 2349,7	5,48	7,21 RuO ₂
Tc 913	2,13	1,53 MnO
Mo 3777,6	8,81	13,21 MoO ₃
Nb	$< 10^{-2}$	
Zr 4050,7	9,45	12,75 ZrO ₂
Y 508,1	1,19	1,51 Y ₂ O ₃
La 1380	3,22	3,77 La ₂ O ₃
Sr 911,15	2,12	2,5 SrO
Ba 1795,44	4,19	4,68 BaO
Rb 371	0,86	0,95 Rb ₂ O
Cs 2649,4	6,18	6,6 Cs ₂ O
Ce 2704,74	6,3	7,74 CeO ₂
Pr 1300	3,03	3,55 Pr ₂ O ₃
Nd 4498	10,5	12,25 Nd ₂ O ₃
Pm 32,3	0,08	
Sm 957,9	2,23	2,68 Sm ₂ O ₃
Eu 191,6	0,45	0,52 Eu ₂ O ₃
Gd 144,9	0,34	0,39 Gd ₂ O ₃
²³⁵ U 1934	4,5	5,31 U ₃ O ₈
²³⁹ Pu 36,5	0,085	0,096 PuO ₂
Np 549	1,28	1,45 NpO ₂
Am 362	0,84	0,954 Am ₂ O ₃
Cm 36,5	0,085	0,096 CmO ₂

1) 2%/00 bzw.

2) 4%/00 der ursprünglichen Menge im abgebrannten Brennelement

Bild 3:
Fließbild des französischen
AVM-Verfahrens
(Atelier Vitrification Marcoule)



nisse werden in diesem Gebiet ausschließlich von der Salztektonik bestimmt. Diese Salzstöcke weisen in der Regel reine Steinsalzzone von einigen 100 m bis zu mehreren km Ausdehnung und Mächtigkeit auf. Ein Schnitt durch die Forschungskaverne im Asse-Sattel, welche wahrscheinlich vergleichbare Struktur besitzt, zeigt Bild 4.

Der Salzstock Gorleben stammt aus der Zechsteinzeit (Paläozoikum) und besitzt eine größte Länge von 14 km und eine größte Breite von 4 km. Seine Basis reicht bis in Tiefen zwischen 1000 m und 4000 m hinab; sein Dach aber kommt mit 300 m verhältnismäßig hoch hinauf.

Im Bereich darüber findet man zwischen 300 und 100 m Tone und Sande aus der Tertiärzeit aus der Mitte des Neozoikum (37 Mio Jahre). In dieser Zeit erfolgte die Auffaltung der Alpen und der Vulkanismus der Mittelgebirge.

Zwischen 100 m und 15 m besteht der Boden aus Schmelzwassersanden und sandigen Kiesen der Weichseleiszeit des Pleistozän. Hier beginnt die Entwicklung des Menschen.

Oberhalb von 15 m wird die Geomorphie durch die seit langem befestigten Dünen aus dem Holozän, dem Ende der letzten Eiszeit vor 10000 Jahren, bestimmt. Zur Beurteilung der Eignung ist jedoch noch eine umfassende geohydrologische Erkundung Voraussetzung, um ein möglichst genaues Bild über die innere Struktur des Salzstockes sowie zum anderen über die Beschaffenheit des wasserführenden Deckgebirges besonders im Grenzbereich Salz-Deckgebirge zu haben. Dieser Grenzbereich ist als Barriere für einen eventuellen Wassereintritt in den Salzstock sehr wichtig, da ja eine mögliche Auslaugung der Endlagerprodukte das größte Gefahrenpotential für die Umwelt bedeuten kann.

Die geologische Formation dieses Endlagers und seine Stabilität während 250 Mio Jahren lassen diesen großen Steinsalzstock mit einem relativ hohen Wahrscheinlichkeitsgrad als geeignet erscheinen, um einen dauernden sicheren Abschluß des radioaktiven Materials von der Biosphäre, d.h. vor allem vom Grundwasser und der Atmosphäre, zu gewährleisten. Denn das Salzgestein ist in größerer Tiefe sowohl für Flüssig-

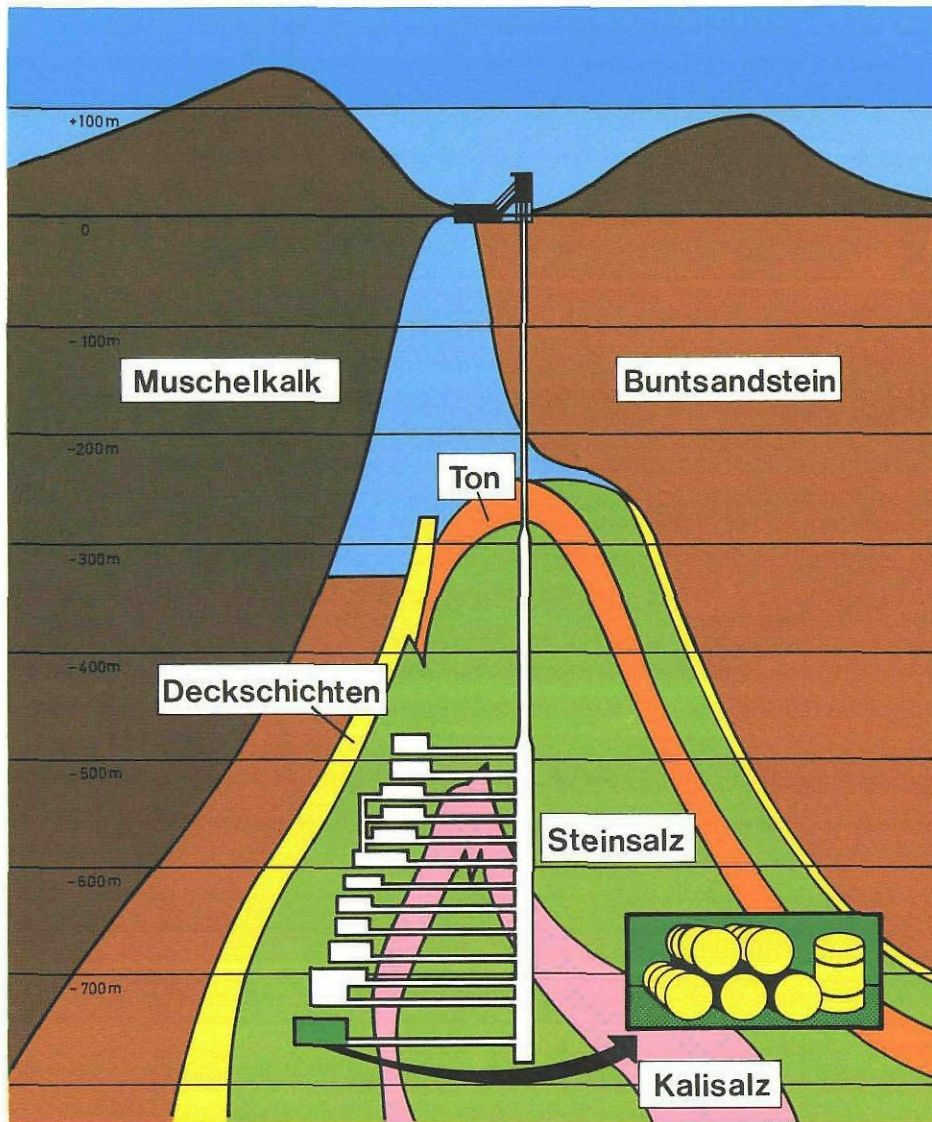
keiten als auch Gase dicht und undurchlässig. Es hat keine Schichtflächen oder offene Spalten und unterscheidet sich von den anderen Gesteinen der Erdkruste durch seine Plastizität. Gleichzeitig erlauben die günstigen felsmechanischen Eigenschaften des Salzdomes die Errichtung großer Hohlräume, die nicht besonders abgestützt werden müssen. Im Vergleich zu anderen Gesteinen hat das Salz eine um den Faktor 2-3 bessere Wärmeleitfähigkeit, so daß die von den radioaktiven Abfällen erzeugte Wärme im Gebirge gut abgeleitet werden kann. Dies ist von entscheidender Bedeutung für die Hochaktivendlagerung.

Die Grundfläche des Salzstockes sollte etwa 20 km² betragen, um die endzulagernden Abfallmengen aufnehmen zu können. Ein solches Endlager ist schematisch in Bild 5 zu sehen.

Die Behälter mit den Endlagerprodukten werden auf Schienenfahrzeugen zum Förderkorb des Schachtes 1 transportiert. Untertage werden die 200 und 400 l Fässer auf Tiefladern in die Einlagerungskammern gebracht. Die Zwischenräume zwischen den Fässern werden von Zeit zu Zeit mit Salz aufgefüllt und verdichtet. Ist eine Lagerkammer gefüllt, so erfolgt das Verschließen der Lagerkammer durch ein Beton-Salz-Gemisch, welches die Konvergenzbewegungen des Gebirges mitvollzieht und die radioaktiven Abfälle gasdicht abschließt.

Die 70 l-Glasblöcke mit den hochaktiven Abfällen werden in gesonderten Lagerstrecken von etwa 1 km Länge endgelagert. In diesen Strecken sind Bohrlöcher von 40 m Tiefe und 35 cm Durchmesser eingebracht. Die Abstände der Bohrlöcher untereinander ergibt sich aufgrund der Wärmeausbreitung. Ist die vorgesehene Anzahl von Blöcken ins Bohrloch eingebracht, so wird jedes Bohrloch durch mehrere Schichten von Beton und Salz über eine Gesamtlänge von 10 m abgedichtet und verschlossen.

Durch diese Einlagerungsmethode scheint nach dem derzeitigen Wissensstand ein sicherer und dauernder Verschluß vor der Biosphäre gewährleistet zu sein.



X

Bild 4:
Schnitt durch den Asse-Sattel
im Bereich des Schachtes II

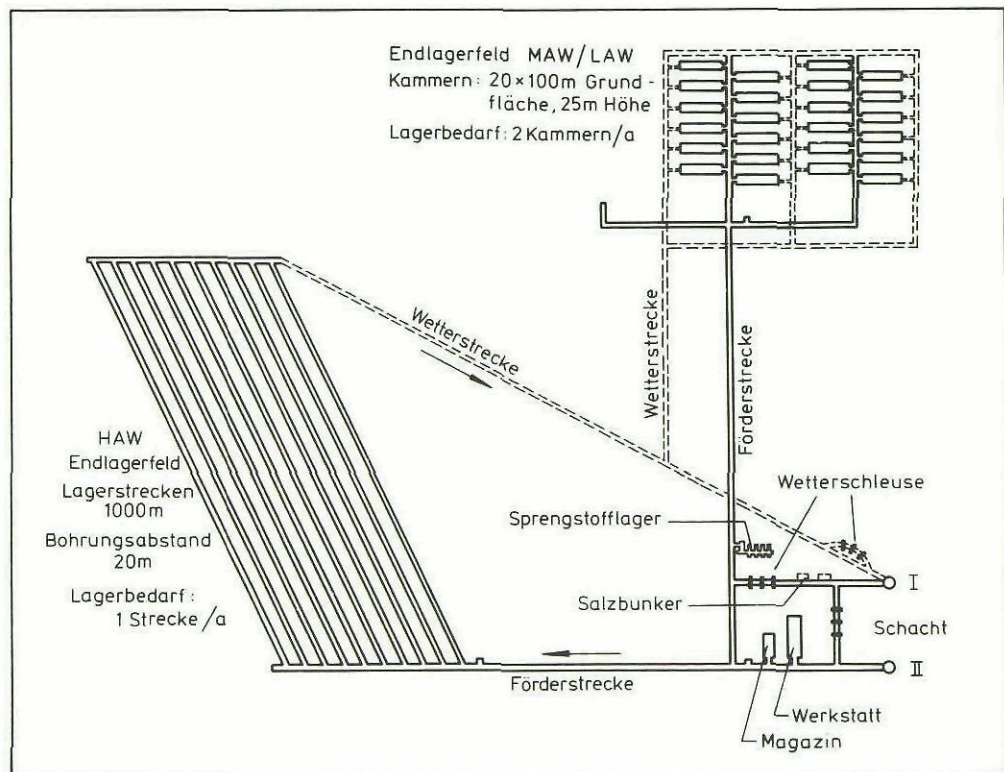


Bild 5:
Grundriß des Grubengebäudes

3. Eigenschaften der verfestigten Abfallprodukte

3.1 Produktcontainment

Die Forderung nach Minimierung des Sicherheitsrisikos zwingt zur Ausschöpfung jeder möglichen Sicherheitsbarriere. Daher versucht man heute in allen Laboratorien der Welt, die sich mit den Abfallprodukten der Kernenergie beschäftigen, durch geeignete Containermaterialien das Risiko einer radioaktiven Freisetzung aus den Produkten in die Umwelt zu senken. Die Möglichkeiten der Umhüllung reichen von einschichtigen Materialien aus Edelstahl bis zu mehrschichtigen Behältern aus Edelstahl-Blei-Keramik-Kombinationen, ja sogar bis zur Einzeleinbettung von Glasperlen in Blei. Ein Beispiel vermittelt Bild 6.

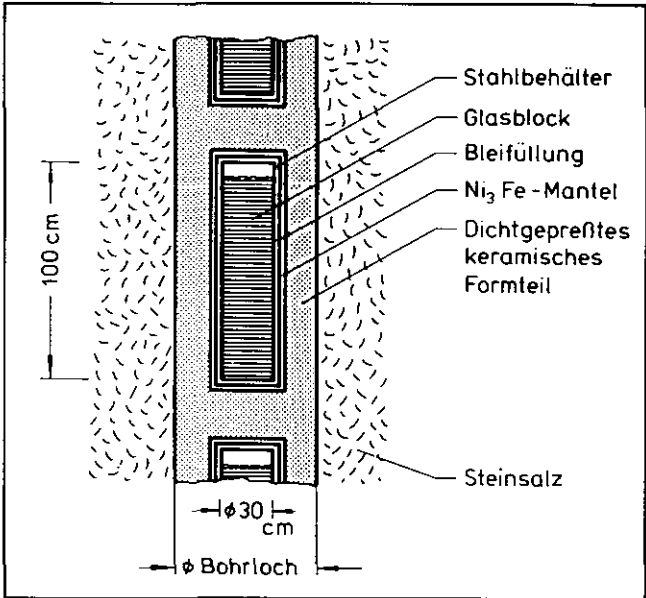


Bild 6:
Eventuelle Barrierenkomponenten

Hierauf näher einzugehen, ist in diesem Rahmen zu zeitaufwendig; denn jeder kann sich vorstellen, wieviel Schichten man für wieviel Geld bekommt. Kurzum bildlich gesprochen, es gibt Goggomobil-containments und Rollce Royce-containments. Hier ist die Frage, in welcher Relation steht die Barrierenwirkungsverbesserung zum materiellen Aufwand.

3.2 Abfallendprodukt (Glas)

Die 1. Barriere für die Spaltproduktfreisetzung, das Endprodukt selber, soll jedoch im Interesse der derzeitigen heftigen Diskussion auch unter den Fachleuten etwas ausführlicher behandelt werden. Dies betrifft die hochaktiven Abfallprodukte und ihre Einbettungsmatrix. Unter Abfallprodukten sind sowohl die Spaltprodukte als auch die Aktiniden gemeint, die beide aufgrund der hohen α -, β - und γ -Aktivitäten das große Sicherheitsproblem darstellen. Daher wurden auch auf dem Gebiet der Einbettung dieser hochradioaktiven Stoffe die meisten Versuche und Tests unternommen. Trotz dieser Bemühungen erscheint für die Sicherheitsbewertung diese Immobilitätsbarriere noch nicht optimiert.

Die Vorschläge für die Produkte reichen vom Einschmelzen des radioaktiven Materials in Gläsern des quasiternären Systems $\text{Na}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ bis zur Implantation in kristalline Phasen. Die Vielfalt der Produkte liegt in der unterschiedlichen Bewertung der Faktoren, die für die Qualitätsanforderungen gestellt werden. Neben der Aufnahmefähigkeit gelten folgende Kriterien:

- A. chemische Eigenschaften
Auslaugbeständigkeit
chem. Verträglichkeit mit Endlagermedien
Freisetzung von Gasen oder Flüssigkeiten
Langzeitstabilität (Wärme, Strahlung)
- B. mechanische Eigenschaften
Dichte, Druckfestigkeit,
Oberflächenvergrößerung
- C. thermische Eigenschaften
Schmelzpunkt bzw. Erweichungsintervall
Kristallisationsbereich
thermische Zersetzung
Wärmeleitfähigkeit
Spez. Wärme

Der Gütegrad der Immobilitätsbarriere des Produktes wird nicht durch Summation von einzelnen produktspezifischen Parameter bestimmt, sondern allein durch die integrale temporäre Radionuklidfreisetzung.

Das Verfahren der Verfestigung in einer Glasmatrix ist technisch am einfachsten machbar und durch die Universalität vielfältig variierbar. Auch in Deutschland wurden schon in Pilotanlagen (KFA-Jülich: FIPS-, KFK-Karlsruhe: VERA-, DWK-Mol: PAMELA-Verfahren) Verglasungen mit radioaktivem Material durchgeführt. Die Qualität und Quantität des Abgases, die Verfügbarkeit im Langzeitbetrieb und die fernbediente Reparaturfreundlichkeit werden die Entscheidung für ein Verfahren bestimmen. Die Kritiker der Verglasung verweisen auf einige Eigenschaften eines Glases, die für die Endlagerung nicht optimal sind. Unter Glas versteht man eine amorph erstarrte Schmelze. Während man früher Gläser als „unterkühlte Flüssigkeiten“ bezeichnete, weiß man heute, daß der Glaszustand sowohl Kristall- als auch Flüssigkeitseigenschaften hat. Die Struktur anorganischer Gläser, um die es sich hier handelt, ähnelt den stark assoziierten Flüssigkeiten und nimmt somit eine Zwischenstellung ein.

In beiden Zuständen gibt es als Grundgruppierung die SiO_4 -Tetraeder mit starken Si-O-Bindungen. Daher sind sowohl Quarzkristalle als auch „Quarzglas“ hart und mechanisch widerstandsfähig.

Während sich die kristalline Struktur durch Nah- und Fernordnung auszeichnet, sind die Gläser strukturell als lediglich nahegeordnet anzusehen und erscheinen in ihren Eigenschaften isotrop (Bild 7).

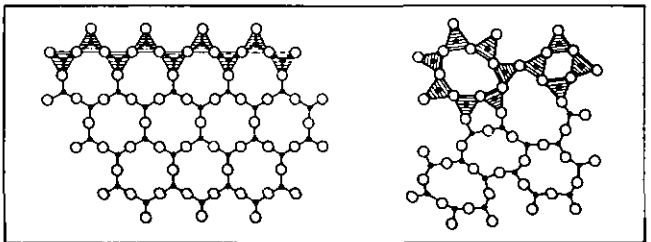


Bild 7:
Zweidimensionale Modelle für den kristallinen (links) und den Glaszustand. Punkte symbolisieren Atome des Si, Kreise symbolisieren O

Da als Folge des ungeordneten Zustandes in einem Glas die Kräfte zwischen den Atomen im Mittel kleiner sind als im entsprechenden Kristall, liegt seine innere Energie höher als die des Kristalls derselben Zusammensetzung (Bild 8).

Dieser thermodynamische Unterschied beruht auf der Tatsache, daß Gläser beim Abkühlen die am Transformationspunkt vorhandene Unordnung (Entropie) beibehalten. Während der Endlagerung entwickeln die Spaltprodukte eine beträchtliche Wärmeenergie (Bild 9) und unter dem Einfluß der Strahlung kann das zu einer Umorientierung der Grundgruppierungen zu

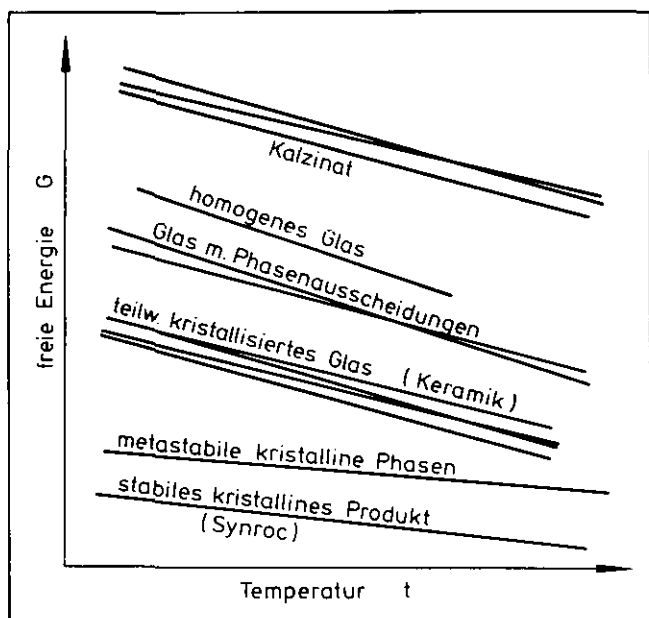


Bild 8a:
Schematische Darstellung der freien Energie von Produkten gleicher Zusammensetzung

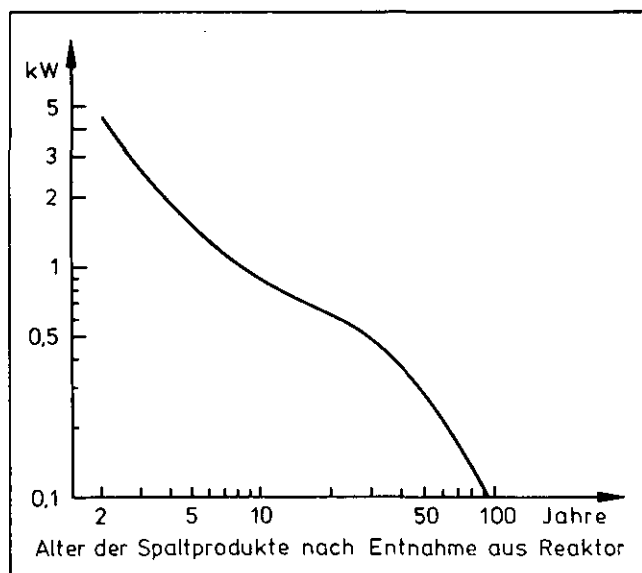


Bild 9:
Abfall der Wärmeleistung eines ein Meter langen HAW-Glaszylinders (Durchmesser 30 cm; 460 g/l Spaltproduktkonzentration) als Funktion der Zeit

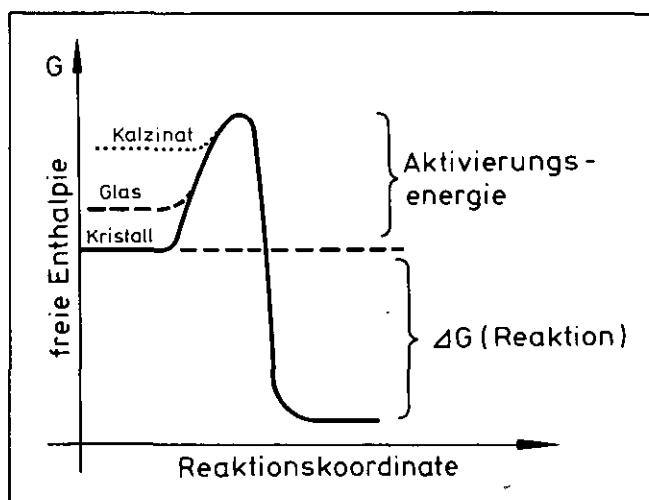


Bild 8b:
Energiebilanz der Reaktion für die 3 unterschiedlichen festen Produkte mit Potentialschwelle

stabilisieren, d.h. kristallineren Modifikationen führen. Man spricht dann von Entglasung. Bei dieser Entglasung können aber, da sie unkontrolliert ist, Phasen entstehen, die im Wasser sehr leicht löslich sind (z.B. Cs_2MoO_4). Damit wäre die 1. Barriere z.T. nicht mehr gewährleistet.

3.3 Andere Verfestigungsprodukte

Daher sind nun Wissenschaftler zu der Überzeugung gekommen, doch ein thermodynamisch stabileres Produkt als Glas zur Einbettung zu benutzen. Zuerst versuchte man es mit Keramiken. Das sind im Grunde auch Gläser, die aber eine höhere Ordnung haben, und zwar dadurch, daß die Abkühlgeschwindigkeit nach einem bestimmten Programm gefahren wird. Diesen Effekt kann man durch Zusatz von Kristallkeimbildnern, wie z.B. TiO_2 , noch erhöhen. Mittlerweile ist in manchen Laboratorien aus dem 3-Komponenten-Grundglas eine Glaskeramik aus etwa 10 Komponenten geworden. Neben einem höheren technischen Aufwand müßten wahrscheinlich die Schmelztemperaturen für diese Keramiken erhöht werden,

was zu einer höheren Verflüchtigung der Spaltprodukte aus der Schmelze führte.

Beim Vergleich der Auslaugraten stellt sich jedoch heraus: Die derzeitigen Keramiken sind nicht besser als die Gläser. Die vermutete Erklärung: Neben den kristallisierten Zonen sind große Anteile an Glasphase vorhanden. Diese bestimmen natürlich die Auslaugdaten, da sie die höheren Werte liefern.

D.h. nach dem derzeitigen Stand der Technik rentiert sich der Mehraufwand für eine Glaskeramik nicht, da die Auslaugdaten nicht besser sind.

Im letzten Jahr haben dann australische Wissenschaftler die, wie sie glauben, Ideallösung in „Synroc“ gefunden. Dies ist ein rein kristallines Produkt. Da aber ein Auskristallisieren aus Lösungen einen technischen Aufwand erfordert, der in Heißen Zellen unmöglich ist, werden den Spaltprodukten fertige Wirtsphasen als stabile Getter angeboten. Der Vorgang ist theoretisch sehr einfach. Man nehme einige Minerale, z.B. Hollandit ein $\text{K}(\text{Al,Fe})\text{Ti}_3\text{O}_8$ u.a., mische sie mit den Spaltprodukten, erhitze es unter Druck und die Spaltprodukte wandern aufgrund des unterschiedlichen chemischen Potentials in die Wirtphase und nehmen dort im Tausch den Platz des z.B. Kalium ein; Kalium wandert aus dem Mineral.

Dieser Synroc läßt sich wahrscheinlich in der Praxis nicht phasenrein und quantitativ herstellen. So gilt aufgrund der Thermodynamik für Austauschreaktionen: je größer der Austausch, desto geringer die Potentialdifferenz, desto langsamer die Reaktion. Unter realistischen Bedingungen ist daher ein Reaktionsgrad von 90 % als maximal anzusehen. Das bedeutet, daß ein Teil der Spaltprodukte ohne Gitterintegration in Restphasen vorliegen. Hierdurch wird bei gleichen Spaltproduktgehalten in den Produkten die integrale Spaltproduktfreisetzung durch Auslaugung der Restphasen anfangs noch höher sein als bei den Gläsern. Repräsentative Versuchsergebnisse liegen allerdings noch nicht vor. Aus technischen und thermodynamischen Gründen scheint der Synroc-Vorschlag als ideale Spaltproduktlagerform z.Z. ein Utopie-Denken zu sein, da man berücksichtigen muß, daß im Spaltproduktstrom etwa 40 verschiedene Elemente in z.T. unterschiedlichen Verbindungen vorliegen, deren chemische Reaktivität auf die einzelnen Wirtsphasen um Größenordnungen differiert.

Welche Produktform letztlich die optimale Endlagereignung hat, ist heute durch objektiven Vergleich noch nicht möglich.

Bei der Gesamtheit der technischen Machbarkeit und den chemischen, mechanischen und thermischen Eigenschaften läßt sich z.Z. und in naher Zukunft das Glas als das beste Einbettungsmaterial für hochradioaktiven Abfall bezeichnen.

4. Schlußbemerkung

Aus den Ausführungen über die Verschiedenheit der Techniken und der Produkte darf man nicht zu der Überzeugung kommen, daß zum Zeitpunkt der Erstellung eines Endlagers im Entsorgungszentrum für die Einlagerung radioaktiver Abfälle keine zuverlässige und akzeptable Lösung zur Verfügung stehen würde. Im Gegenteil. Schon heute sind für die schwach- und mittelaktiven Abfälle sichere Technologien in der Erprobung. Für die hochaktiven Abfälle ist jedes der bisher entwickelten Verfahren und Produkte in der Lage, die Spaltproduktlösungen in eine geeignete feste Endlagerform zu überführen.

Die Optimierung aller 3 Barrieren gegen möglicherweise freierwerdende Aktivitäten und deren Ausschließung vom Biozyklus sollte mit Nachdruck weiter vorangetrieben werden, um alle zur Verfügung stehenden Sicherheitsreserven in die Technologie der Schließung des Brennstoffkreislaufes einzubeziehen.

5. Literatur

ALBRECHT, E.: Die Tief Lagerung radioaktiver Abfälle in Salzformationen der Bundesrepublik Deutschland. In: Jül-Conf-24, Dezember 1977

GASTEIGER, R.: Abbrandrechnungen für LWR-Brennstoff als Datenbais zur Auslegung von Wiederaufarbeitungsanlagen. KFK-Bericht 2373 (1976)

HALASZOVICH, St. et al.: Spaltproduktverglasung nach dem FIPS-Verfahren. In: Jül-Conf-30, Februar 1979

McCARTHY, G.J.: Preliminary Evaluation of the Characteristics of Nuclear Wastes relevant to Geologic Isolation in Basalt. RHO-C-12, May 1978

MERZ, E.: Entsorgung von Kernkraftwerken. KFA-ICT-IB 436/79

ODOJ, R.: Prozeßchemie bei der Spaltproduktverfestigung. In: Jül-Conf-30, Februar 1979

ODOJ, R. et al.: Massenspektrometrische Hochtemperaturuntersuchungen von Verbindungen des quasi-ternären Systems $Cs_2O-Al_2O_3-SiO_2$. Jül-Bericht 1460 (1977)

RINGWOOD, A.E.: Safe Disposal of high level nuclear reactor waste. A New strategy. Australien National University Press, Camberra, Australia 1978

Strahlenschutz bei der Entsorgung der Kernkraftwerke

P.F. Sauermann

Institut für Chemie der Kernforschungsanlage Jülich GmbH

1. Einleitung

Aus einem 1000 MW-Kernkraftwerk werden pro Jahr etwa 30 t bestrahlter Brennelemente entladen, welche transportiert, zwischengelagert und schließlich wiederaufgearbeitet werden müssen.

Das Aktivitätsinventar der ca. 60 Brennelemente beträgt bei der Entladung etwa 150 Millionen Curie. Nach einem Jahr ist die Aktivität auf etwa 43, nach 10 Jahren auf etwa 6 Millionen Curie abgeklungen.

Zum Schutze des Personals und der Umwelt erfordert die Handhabung derartig großer Aktivitätsmengen ein umfangreiches Instrumentarium gesetzgeberischer und technischer Maßnahmen.

Grundlage der Strahlenschutzgesetzgebung aller Länder der Erde sind die Empfehlungen der Internationalen Strahlenschutz-Kommission (International Commission on Radiological Protection – ICRP), die ihre Strahlenschutz-Grundsätze so formulierte⁽¹⁾:

- Es darf keine Tätigkeit gestattet werden, deren Einführung nicht zu einem positiven Nettonutzen führt.
- Alle Strahlenexpositionen müssen so niedrig gehalten werden, wie es unter Berücksichtigung wirtschaftlicher und sozialer Faktoren vernünftigerweise erreichbar ist (das sogenannte ALARA-Prinzip: The Exposure must be As Low As Readily Achievable).
- Die Äquivalentdosis von Einzelpersonen darf die von der Kommission empfohlenen Grenzwerte nicht überschreiten.

In der deutschen Gesetzgebung wurden diese Grundsätze insofern weiter verschärft, als die Formulierung „vernünftigerweise erreichbar“ durch „so gering wie möglich“ ersetzt wurde.

Für die Bundesrepublik Deutschland gelten die folgenden Strahlenschutzgrundsätze (§ 28 der Strahlenschutzverordnung⁽²⁾):

- Jede unnötige Strahlenexposition oder Kontamination von Personen, Sachgütern oder der Umwelt ist zu vermeiden.
- Jede Strahlenexposition oder Kontamination von Personen, Sachgütern oder der Umwelt ist unter Beachtung des Standes von Wissenschaft und Technik und unter Berücksichtigung aller Umstände des Einzelfalles auch unterhalb der festgelegten Grenzwerte so gering wie möglich zu halten.

Hiermit sind die Ziele des Strahlenschutzes eindeutig festgelegt.

2. Berufliche Strahlenexposition

2.1 Einige Grundlagen des Strahlenschutzes

Nach § 49 der Strahlenschutz-Verordnung⁽²⁾ dürfen die Körperdosen für beruflich strahlenexponierte Personen die festgelegten Grenzwerte nicht überschreiten.

In Tabelle 1 sind diese Dosisgrenzwerte und die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr für einige wichtige Radionuklide angegeben.

Körperbereich	Dosisgrenzwert rem/Jahr	Radionuklid	GJAZ µCi/Jahr
Ganzkörper, Knochenmark, Keimdrüsen	5	Tritium	12 000
Hände, Füße	60	C-14	8 670
Haut	30	Sr-90	2.83
Knochen, Schilddrüse	30	J-129	4.0
andere Organe	15	Cs-137	36.7
		Pu-239	4.3 · 10 ⁻³

Tabelle 1: Dosisgrenzwerte und Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr (GJAZ) für den Ablutpfad für beruflich strahlenexponierte Personen [2]

Die Grenzwerte der Jahresaktivitätszufuhr bedeuten, daß das jeweilige kritische Organ bei über ein Jahr verteilter Aktivitätsaufnahme die Grenzwertdosis erhalten würde. Beispielsweise würde die Schilddrüse durch die verteilte Aufnahme von 4 µCi Jod-129 je Jahr eine Organdosis von 30 rem erhalten.

Eine Strahlenexposition des Personals kann also grundsätzlich erfolgen durch

- Bestrahlung des Körpers von außen (externe Bestrahlung).
- Bestrahlung des Körpers von innen (interne Bestrahlung nach Inkorporation radioaktiver Stoffe).

Die langjährige Strahlenschutzpraxis hat indes gezeigt, daß die Dosisaufnahme der beruflich strahlenexponierten Personen durch die interne Strahlung inkorporierter radioaktiver Stoffe gegenüber der externen Strahlendosis von untergeordneter Bedeutung ist. Daher konzentrieren sich die Bemühungen des praktischen Strahlenschutzes im Sinne der oben zitierten Grundsätze des Strahlenschutzes darauf, die externe Strahlenexposition des Personals weiter zu reduzieren.

Der externen Bestrahlung begegnet man insbesondere durch Beachtung der folgenden drei Grundregeln des Strahlenschutzes:

1. Beschränkung der Aufenthaltsdauer in einem gegebenen Strahlenfeld. Die Dosis D ist proportional der Dosisleistung \dot{D} und der Aufenthaltsdauer t: $D = \dot{D} \cdot t$

2. Abstand von Strahlenquellen. Bei γ -Strahlern (analog auch bei Neutronenquellen) ist die Dosisleistung \dot{D} (Dosis durch Zeit: D/t) einer punktförmigen Strahlenquelle umgekehrt proportional dem Quadrat des Abstandes r von der Strahlenquelle:

$$\dot{D}_0 = \frac{\Gamma \cdot A}{r^2}$$

Γ ist die sogenannte Dosisleistungskonstante (die Dosisleistung eines γ -Strahlers mit einer Aktivität von 1 mCi in einem Meter Abstand), während A (mCi) die Aktivität des γ -Strahlers ist.

Obige Gleichung sagt aus, daß die Dosisleistung (und damit nach 1. auch die Dosis) beispielsweise auf ein Viertel reduziert werden kann, indem der Abstand zur Strahlenquelle verdoppelt wird.

3. Abschirmung von Strahlenquellen. Wenn, wie beispielsweise bei der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente, die beiden ersten Grundregeln nicht angewendet werden können, müssen Strahlenquellen allseitig abgeschirmt werden.

2.1.1 Abschirmung ionisierender Strahlung

Die grundlegenden Gesetzmäßigkeiten der Abschirmung ionisierender Strahlung können am einfachsten am Beispiel der punktförmigen γ -Strahlenquelle erklärt werden. Die Dosisleistung \dot{D} einer punktförmigen γ -Strahlenquelle hinter einer Abschirmung mit der Wandstärke x cm ist gegeben durch:

$$\dot{D} = \dot{D}_0 \cdot B \cdot e^{-\mu x}$$

$$\text{mit } \dot{D}_0 = \frac{\Gamma \cdot A}{r^2},$$

dem Aufbaufaktor B (der die Wirkung der in der Abschirmung gestreuten γ -Quanten erfaßt) und dem Schwächungskoeffizienten μ cm⁻¹ (der die Abschirmeigenschaften des Abschirmmaterials berücksichtigt).

$$S = \frac{\dot{D}_0}{\dot{D}} = \frac{1}{B} \cdot e^{\mu x}$$

wird als Schwächungsfaktor bezeichnet^[3].

Während sich \dot{D}_0 aus den Eigenschaften des γ -Strahlers (Dosisleistungskonstante Γ ^[3]), der Aktivität A der Strahlenquelle und dem Abstand r berechnen läßt, ist \dot{D} im allgemeinen durch gesetzliche Regelungen vorgegeben. In Kontrollbereichen^[2] sind Abschirmungen beispielsweise so auszulegen, daß an ihrer zugänglichen Seite eine Dosisleistung von $\dot{D} = 0.5$ mrem/h nicht überschritten wird.

Wie eine Abschirmung in einfacher Weise abgeschätzt werden kann, soll am Beispiel eines bestrahlten Brennelementes mit einer Kühlzeit von einem Jahr erklärt werden. In Tabelle 2 ist das Spaltprodukt- und Aktinideninventar eines derartigen Brennelementes angegeben^[4]. Die Dosisleistung \dot{D}_0 der in einem Brennelement enthaltenen γ -Strahler beträgt in 2 m Abstand etwa $3 \cdot 10^7$ mrem/h, die effektive Energie dieser γ -Strahlung liegt bei etwa 1.2 MeV. Nach obiger Festlegung muß die Abschirmung für ein derartiges Brennelement, etwa für eine Prozeßzelle in einer Wiederaufarbeitungsanlage, eine Schwächung um

$$S = \frac{\dot{D}_0}{\dot{D}} = \frac{3 \cdot 10^7}{0.5} = 6 \cdot 10^7$$

bewirken.

In Bild 1 sind die Reziprokwerte $1/S$ des Schwächungsfaktors S für verschiedene Abschirmstoffe und eine γ -Energie von

1.25 MeV angegeben. Diese Energie wird in der kerntechnischen Normung als „Normenergie“ der Auslegung von Abschirmungen zugrunde gelegt^[5]. Aus Bild 1 kann abgelesen werden, daß eine Prozeßzelle zur Verarbeitung eines bestrahlten, ein Jahr abgekühlten Brennelementes eine Normalbetonabschirmung von etwa 160 cm Wanddicke besitzen muß. Die entsprechende Baryttonabschirmung müßte etwa 110 cm, eine Bleiabschirmung nur 30 cm dick sein.

Radio-nuklid	Halbwerts-zeit	Aktivität Ci/t	
		nach der Entladung	nach 1 Jahr
H-3	12,3 a	$7,09 \cdot 10^2$	$6,70 \cdot 10^2$
Kr-85	10,8 a	$1,13 \cdot 10^4$	$1,06 \cdot 10^4$
Sr-90	28,5 a	$7,76 \cdot 10^4$	$7,57 \cdot 10^4$
Zr-95	64,0 d	$1,37 \cdot 10^6$	$2,80 \cdot 10^4$
Ru-106	368 d	$5,45 \cdot 10^5$	$2,73 \cdot 10^5$
J-129	$1,57 \cdot 10^7$ a	$3,71 \cdot 10^{-2}$	$3,74 \cdot 10^{-2}$
J-131	8,04 d	$8,61 \cdot 10^5$	-----
Cs-134	2,06 a	$2,46 \cdot 10^5$	$1,76 \cdot 10^5$
Cs-137	30,1 a	$1,08 \cdot 10^5$	$1,05 \cdot 10^5$
Ce-144	284,8 d	$1,11 \cdot 10^6$	$4,56 \cdot 10^5$
Pm-147	2,62 a	$1,02 \cdot 10^5$	$8,39 \cdot 10^4$
Pu-239	$2,4 \cdot 10^4$ a	$3,18 \cdot 10^2$	$3,23 \cdot 10^2$
Pu-240	$6,5 \cdot 10^3$ a	$4,77 \cdot 10^2$	$4,77 \cdot 10^2$
Pu-241	14,9 a	$1,05 \cdot 10^5$	$1,00 \cdot 10^5$
Am-241	433 a	$8,59 \cdot 10^1$	$2,50 \cdot 10^2$
Cm-242	163 d	$3,34 \cdot 10^4$	$7,14 \cdot 10^3$
Cm-244	18,1 a	$2,44 \cdot 10^3$	$2,35 \cdot 10^3$
Summe		$4,57 \cdot 10^6$	$1,32 \cdot 10^6$

Tabelle 2: Spaltprodukt- und Aktinideninventar von LWR-Brennelementen in Curie pro Tonne Schwermetall bei 33 000 MWd/t Abbrand (Programm ORIGEN [4])

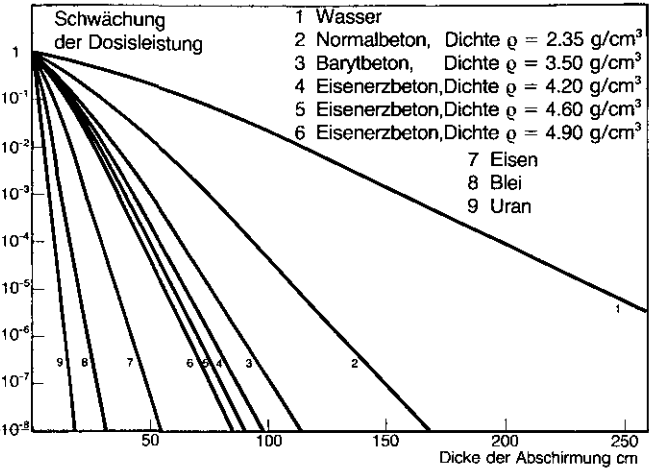


Bild 1: Schwächung der γ -Strahlung einjähriger Spaltprodukte in verschiedenen Abschirmstoffen^[3]

Die Dicke der Abschirmung für einen Transportbehälter läßt sich in ähnlicher Weise abschätzen. Die Dosisleistung \dot{D}_0 eines einjährigen Brennelementes in 1 m Abstand beträgt etwa $1.2 \cdot 10^8$ mrem/h.

Die Abschirmung ist so auszulegen, daß die Dosisleistung an der Oberfläche des Transportbehälters (in diesem Beispiel: 1 m Abstand von der als punktförmig angenommenen Strahlenquelle) 200 mrem/h nicht übersteigt^[3-13]. Damit wird

$$S = 6 \cdot 10^5 \text{ und } 1/S = 1.7 \cdot 10^{-6}.$$

Bild 1 gibt an, daß die Abschirmung folgende Wandstärken besitzen muß.

- Eisen: 40 cm
- Blei: 23 cm
- Uran: 13 cm

In ähnlich einfacher Weise kann auch die Abschirmung der schnellen Neutronen abgeschätzt werden, die ein bestrahltes Brennelement aufgrund der Spontanspaltung der Aktinid-Elemente Cm-242 und Cm-244 aussendet. Die entsprechenden Schwächungskurven sind in Bild 2 angegeben^[6].

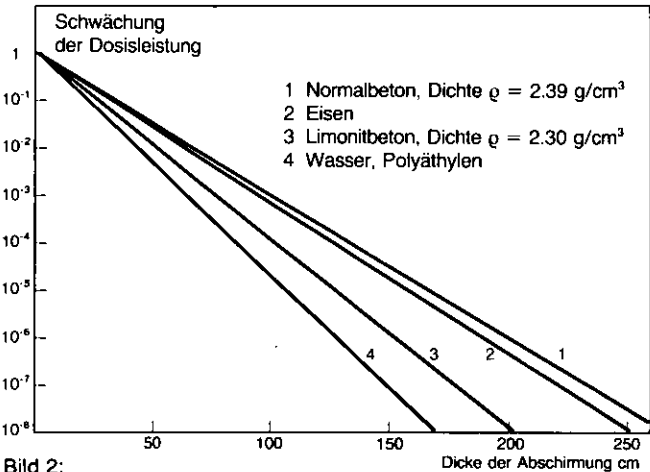


Bild 2: Schwächung der Neutronen-Strahlung einjähriger Spaltprodukte in verschiedenen Abschirmstoffen^[6]

Die schnellen Neutronen spielen bezüglich des Strahlenschutzes bei den in der Praxis vorkommenden Kühlzeiten eine untergeordnete Rolle. Bei einem Transportbehälter tragen sie nur mit etwa 15 % zur Gesamtdosisleistung bei, hinter Betonabschirmungen (Prozeßzellen) können sie ganz außer Betracht bleiben.

2.1.2 Rückhaltung von Spaltprodukten

Bei der Auflösung der bestrahlten Brennelemente^[18] gelangen einige flüchtige Spaltprodukte in das Auflöserabgas. Ihre Freisetzung in die Anlagenräume und die Umgebung muß durch geeignete Rückhalteeinrichtungen auf ein für die Beschäftigten und die Umwelt ungefährliches Maß reduziert werden. Die hierzu erforderlichen Rückhaltetechniken für radioaktive Stoffe in Abluft und Abwasser entsprechen zwar den bei Kernkraftwerken und Radionuklid-Laboratorien langjährig bewährten Verfahren, jedoch spielen bei Wiederaufarbeitungsanlagen einige Radionuklide eine wichtige Rolle, die bei Kernkraftwerken von untergeordneter Bedeutung sind. Dies sind insbesondere das radioaktive Edelgas Kr-85, der radioaktive Kohlenstoff C-14 sowie das Jodisotop J-129. Hinzu kommen insbesondere die auch aus Kernkraftwerken freigesetzten Radionuklide Sr-90 und Cs-137 sowie der radioaktive Wasserstoff H-3 (Tritium).

Das Edelgas Kr-85, das zu 100 % in das Auflöserabgas gelangt, wird mit Hilfe der Tieftemperaturrektifikation, einem seit langem zur Trennung und Verflüssigung von Gasen verwendeten Verfahren, aus dem Abgas abgeschieden, wobei auch Tritium und C-14 teilweise aus dem Abgasstrom entfernt werden. Das in den bestrahlten Brennelementen enthaltene J-129 wird zu mehr als 99 % in das Auflöserabgas freigesetzt und mit speziellen Sorptionsfiltern abgeschieden, die einen Rückhaltefaktor von bis zu 10⁴ erreichen^[7]. Die im Abgas mitgeführten Aerosole (Sr-90, Cs-137, sonstige β- und γ-Strahler) werden durch die seit langem in der Kerntechnik bewährten Aerosolfilter mit Abscheidegraden von mehr als 99,95 % wirksam abgeschieden. Eine ausführliche Beschreibung der Spaltprodukt-Rückhaltung wird bei^[8] gegeben.

2.2 Transport bestrahlter Brennelemente

Ein bestrahltes Brennelement eines Druckwasserreaktors vom Typ Biblis hat bei der Entladung aus dem Kernkraftwerk ein

Spaltprodukt- und Aktinideninventar von etwa 2.5 Millionen Curie, welches eine Zerfallswärme von etwa 10 kW abgibt. Nach einem Jahr ist die Aktivität auf etwa 0.7 Millionen Curie abgefallen^[4]. Da nicht ganz auszuschließen ist, daß einzelne Brennstäbe eines Elementes während des Reaktorbetriebes undicht geworden sind, muß Vorsorge gegen austretende Edelgase und Aerosole getroffen werden. Transportbehälter zur Beförderung derartiger Brennelemente müssen daher folgenden Anforderungen genügen:

- Abschirmung von γ-Strahlung und Neutronen
- Abfuhr von Zerfallswärme
- Dichte Umschließung

Darüber hinaus müssen sie kritikalitätssicher sein, damit in ihnen auch wenig abgebrannte Brennelemente gefahrlos befördert werden können.

Die Einhaltung dieser Anforderungen muß auch im Falle schwerer Transportunfälle gewährleistet sein. Dies ist entsprechend den in ^[9-13] festgelegten Prüfbedingungen nachzuweisen durch

- Fall aus 9 m Höhe auf eine unnachgiebige Oberfläche
- Fall aus 1 m Höhe auf einen Dorn
- halbstündiges Feuer von 800 °C
- Dichtheitsprüfung durch Eintauchen in ein Wasserbecken (8 Stunden bei 15 m Tiefe)

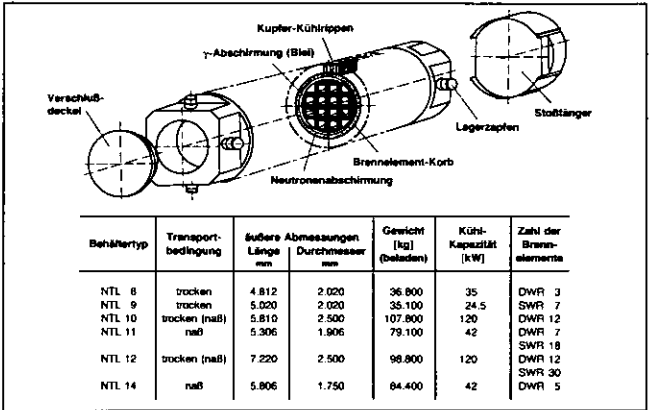


Bild 3: Transportbehälter für bestrahlte Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren^[14]

Bild 3 zeigt den Aufbau eines Transportbehälters am Beispiel des NTL 10 für 12 Druckwasserreaktor-Brennelemente^[14]. Er besteht aus:

- einem Einsatzkorb aus gut wärmeleitendem, mit neutronenabsorbierenden Stoffen legiertem Material
- einer γ-Abschirmung aus Schwermetall (Blei)
- einer Neutronenabschirmung aus wasserstoffhaltigem Material gegen die spontanen Neutronen der Curium-Isotope 242 und 244
- Wärmeabfuhrrippen oder Zwangskühlsystem
- Stoßfängern zum Schutz von Verschußdeckel- und Behälteröffnung.

Die für den Strahlenschutz des Personals und der Umwelt wesentlichen konstruktiven Gesichtspunkte eines derartigen Transportbehälters sind folgende:

Die Abschirmung muß gewährleisten, daß die Dosisleistung von γ-Strahlung und Neutronen an der Oberfläche des Transportbehälters 200 mrem/h (nach einem Unfall: 1 rem/h) und in 1 m Abstand 10 mrem/h nicht übersteigt. γ-Abschirmungen bestehen aus Blei, Eisen oder abgereichertem Uran. Die Wanddicken betragen 20 bis 40 cm. Zur Abschirmung der

schnellen Neutronen wird mit Bor versetztes Polyäthylen oder Preßholz verwendet; die Wandstärken betragen 10-15 cm.

Die dichte Umschließung, welche die Ausbreitung des radioaktiven Inventars verhindert, muß auch bei einem Unfall gewährleistet sein. Wegen der dickwandigen Abschirmung sind allein der Verschlußdeckel und die Einlaßöffnung kritische Punkte, welche daher durch Stoßfänger geschützt werden.

Die Gefahr, daß bestrahlte Brennelemente nach Erreichung des Zielabbrandes unbeabsichtigt kritisch werden, ist sehr gering. Dennoch werden, wie bereits erwähnt, die zur Herstellung der Brennelemente-Körbe verwendeten Materialien mit Neutronenabsorbieren (z.B. Bor) legiert.

Die Strahlenexposition des Personals ergibt sich insbesondere bei der Be- und Entladung sowie der Dekontamination der Behälter.

Eine Reduzierung dieser Strahlenexposition kann nur durch Reduzierung des Zeitaufwandes bei diesen Tätigkeiten erreicht werden.

Möglichkeiten hierzu bieten sich durch

- gute Dekontaminierbarkeit der Oberflächen der Behälter
- leichte Handhabung
- gute technische Einrichtungen im Kernkraftwerk, dem Zwischenlager und der Wiederaufarbeitungsanlage
- intensive Schulung des Personals.

2.3 Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente

Die Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren wird gegenwärtig ausschließlich in Wasserbecken vorgenommen, wie in den Bildern 4 und 5 dargestellt^[15]. Da die Wasserschicht, welche die Brennelemente überdeckt, mehrere Meter beträgt (für das Brennelement-Zwischenlager Ahaus ist eine Wasserüberdeckung von 8 m vorgesehen), ist die Dosisleistung der γ - und Neutronenstrahlung an der Wasseroberfläche unmeßbar und daher vernachlässigbar klein. Die Strahlenexposition des Personals eines Brennelement-Zwischenlagers ergibt sich daher überwiegend durch die Bestrahlung beim Brennelementempfang und der Überführung der Brennelemente aus dem Transportbehälter in das Lagerbecken. Eine weitere Möglichkeit der Strahlenexposition besteht in einer äußeren Bestrahlung durch radioaktive Edelgase aus undichten Brennelementen sowie durch kontaminiertes Beckenwasser, das auch zu geringfügigen Inkorporationen radioaktiver Stoffe führen kann. Bei der trockenen Lagerung von bestrahlten Brennelementen, wie sie kürzlich vorgeschlagen wurde^[16], werden die Brennelemente in speziellen Trans-

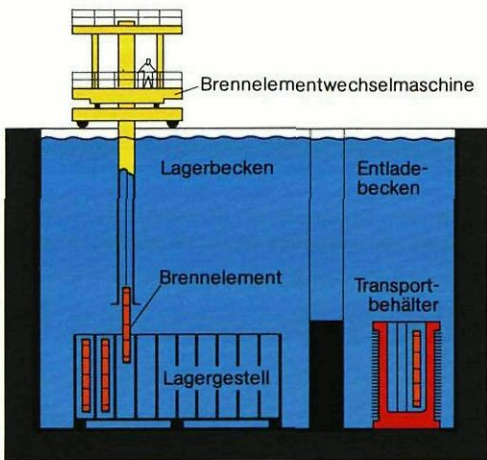
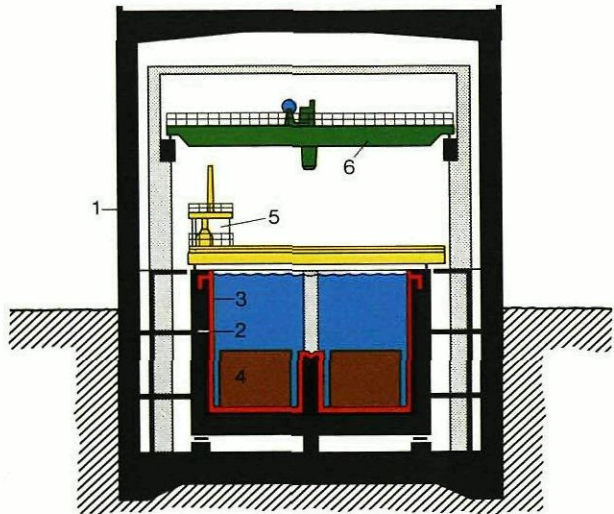


Bild 4: Schema des Entladevorganges^[15]



1 Brennelement-Lagergebäude 4 Lagergestell
2 Lagerbecken 5 Brennelementwechselsmaschine
3 Edelstahlauskleidung 6 Gebäudekran

Bild 5: Querschnitt durch das Brennelement-Lagergebäude^[15]

portbehältern gelagert. Der in Bild 6 dargestellte Transportbehälter besteht aus Gußeisen mit Kugelgrafit (Sphäroguß), das gute Verformbarkeit mit hoher Festigkeit verbindet. Die Wandstärke beträgt etwa 40 cm. An der Außenseite ist der Behälter mit Kühlrippen versehen. Weitere Angaben zur Auslegung des Behälters sind in Tabelle 3 und Bild 6 enthalten.

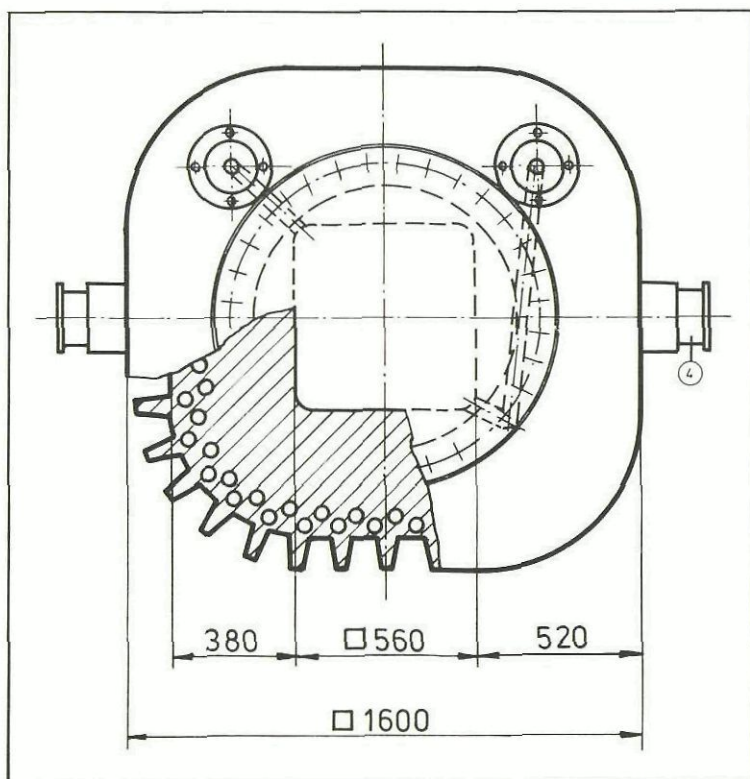
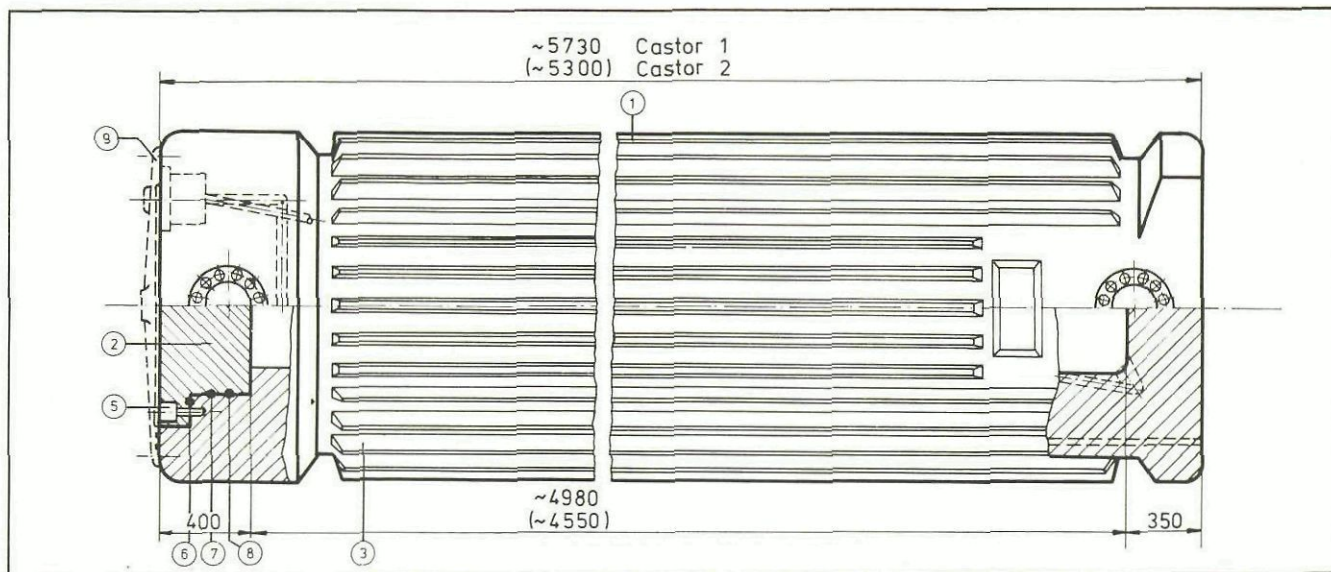
Behältertyp	äußere Abmessungen (mm)		Gewicht (kg) (beladen)	Zahl der Brennelemente
	Länge	Durchmesser		
Castor 1	5.730	1.600	80.000	SWR 16
Castor 2	5.300	1.600	70.000	DWR 4

Tabelle 3: Transport- und Lagerbehälter aus Gußeisen für bestrahlte Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren [16]

Wie der in 2.2 beschriebene Transportbehälter mit Bleiab-schirmung entspricht auch dieser Behälter den internationalen Vorschriften^[9-13] bezüglich Abschirmung, Feuerbeständigkeit, Festigkeit und Dichtheit.

Bild 7 zeigt den Behälter bei der Fall- und Feuerprüfung auf dem Prüfstand der Bundesanstalt für Materialprüfung in Berlin (der für die Behälterzulassung zuständigen deutschen Behörde).

Gegenüber der nassen Lagerung von bestrahlten Brennelementen bietet die trockene Lagerung bezüglich des Strahlenschutzes des Personals den Vorteil, daß das Austreten radioaktiver Edelgase und Aerosole aus undichten Brennelementen und damit die Inkorporation radioaktiver Stoffe mit Sicherheit verhindert werden kann. Demgegenüber ist jedoch die Gefährdung durch äußere Bestrahlung bei der langfristigen Lagerung, die bei der nassen Lagerung eine geringe Rolle spielt, größer. Dies zeigt Bild 8. Die Abschirmung der Behälter ist so ausgelegt, daß bei Beladung mit Brennelementen, die einige Jahre lang abgekühlt sind, die Dosisleistung an der Oberfläche jeweils etwa 10 mrem/h beträgt. Werden die Behälter, wie in Bild 8 gezeigt, so aufgestellt, daß ein Zwischenraum zur Begehung frei bleibt, so muß die Aufenthaltszeit zwischen den Behältern beschränkt werden. Werden die Behälter jedoch so zusammengedrückt, daß die Zwischenräume nicht begangen werden können, läßt sich die Strahlenexposition des Lagerpersonals durch zusätzliche Abschirmmaßnahmen beliebig redu-



Der Transportbehälter ist ein dickwandiger (ca. 400 mm) Gußkörper aus einem speziellen Gußeisen (Sphäroguß) ①, das eine besonders gute Verformbarkeit bei enormer Festigkeit aufweist. Er wird mit einem Deckel ② gleichen Materials verschlossen. Der Gußkörper wird an der Außenseite mit stabilen Kühlrippen ③ versehen. Am Kopf- und Fußteil des Grundkörpers sind je zwei Tragzapfen ④ angeschraubt.

Der Deckel ② ist ebenfalls ca. 400 mm dick und mit 32 ca. 40 mm starken Schrauben ⑤ mit dem Grundkörper verbunden. Die Abdichtung zwischen Deckel und Grundkörper erfolgt durch zwei Radial-⑥ und eine Axialdichtung ⑦, dazwischen befindet sich ein Anschluß zur Leckage-Überwachung ⑧.

Über dem Hauptdeckel ist zur Bildung einer Sperrzone der zweite Deckel ⑨ dicht aufgeschraubt.

Bild 6: Transport- und Lagerbehälter Castor für bestrahlte Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren^[16]



Bild 7: Transport- und Lagerbehälter Castor auf dem Prüfstand der Bundesanstalt für Materialprüfung (BAM). Fallprüfung aus 9 m Höhe und Feuerprüfung^[16]

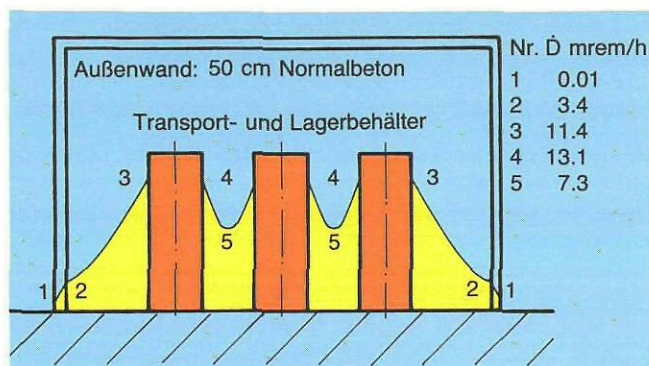


Bild 8:
Dosisleistungen mrem/h im Trockenbehälterlager; γ -Dosisleistung an der Oberfläche jedes Einzelbehälters: 10 mrem/h

zieren. Je nach Alter der eingelagerten Brennelemente ist in diesem Falle möglicherweise eine Zwangskühlung (Luftkühlung) erforderlich.

2.4 Wiederaufarbeitung und Abfallkonditionierung

2.4.1 Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)

Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe wurde als Versuchsanlage zur Erprobung von Wiederaufarbeitungsprozessen und der hierzu erforderlichen technischen Einrichtungen errichtet^[17]. Zur Wiederaufarbeitung wird das langjährig erprobte PUREX-Verfahren in Verbindung mit der chop-leach-Technik (Zerkleinerung und Auflösen der Brennelemente) angewendet^[18]. Mit Ausnahme des head-end-Bereiches (Eingangsstufe) ist die Anlage für die direkte Wartung der Einrichtung nach der Dekontamination der Zellen ausgelegt. Die nominelle Verarbeitungskapazität beträgt 175 kg Uran je Tag an Leicht- und Schwerwasserbrennelementen mit einer maximalen Anreicherung von 3 % und einem Abbrand von bis zu 40 000 MWd/t Uran. 200 Tage/Jahr sind für den normalen Betrieb der Anlage, 165 Tage/Jahr zur Wartung, Inspektion, Reparaturarbeiten sowie Änderungen der Anlage aufgrund der Betriebserfahrungen vorgesehen.

Zwischen 1971 und 1979 wurden in acht Wiederaufarbeitungskampagnen bestrahlte Brennelemente aus sechs verschiedenen deutschen Kernkraftwerken mit durchschnittlichen Abbränden von 29 000 MWd/t Uran (Siedewasserreaktor-Brennelemente) aufgearbeitet. Der höchste Abbrand lag bei

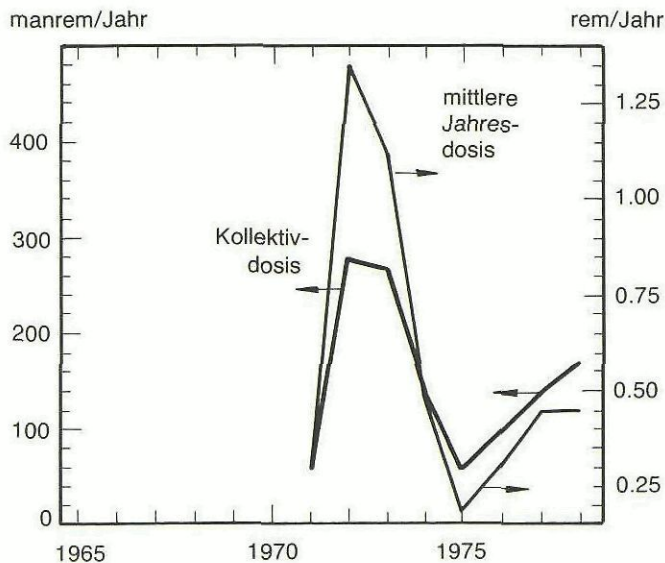


Bild 9:
Kollektivdosis und mittlere Jahresdosis beruflich strahlenexponierter Personen in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe, WAK^[19]

39 000 MWd/t Uran, die Kühlzeiten variierten von 0.5 bis 7.5 Jahren. Insgesamt wurden 86 t Uran und 415 kg Plutonium durchgesetzt^[19].

Der beschriebene Charakter einer Versuchsanlage spiegelt sich im Verlauf der beruflichen Strahlenexposition der Mitarbeiter der WAK von 1971 bis 1978 wieder. Wie aus Bild 9 ersichtlich, wurde die höchste mittlere Ganzkörperdosis im Jahre 1972, dem ersten vollen Betriebsjahr, erreicht (1.34 rem/Jahr = 27 % des Dosisgrenzwertes). Dieser Maximalwert in der bisherigen Betriebsgeschichte der WAK war einerseits bedingt durch die bei neuen Anlagen erfahrungsgemäß zu erwartenden technischen Schwierigkeiten, andererseits dadurch, daß Brennelemente mit nur geringen Kühlzeiten (< 1 Jahr) verarbeitet wurden. In den folgenden Jahren konnte die mittlere Jahresdosis schrittweise durch kontinuierliche Verbesserung der Arbeitstechniken und technischen Einrichtungen sowie des Strahlenschutzes auf weniger als 0.45 rem/Jahr (9 % des Dosisgrenzwertes im Jahre) gesenkt werden. Der parallele Verlauf von Kollektivdosiskurve und Individualdosiskurve läßt erkennen, daß diese Reduzierung der mittleren Dosis nicht durch eine Vermehrung der Zahl der Mitarbeiter erreicht wurde. Der Dosisgrenzwert von 5 rem/Jahr wurde in keinem Fall überschritten; der höchste Wert wurde mit 3.95 rem im Jahre 1973 gemessen^[19].

2.4.2 Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River

Im Gegensatz zur WAK (etwa 300 Mitarbeiter) handelt es sich bei der Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River um eine Großanlage mit nahezu 1 800 Beschäftigten. Die Anlage wurde 1956 als militärische Anlage in Betrieb genommen, bei der die Gewinnung von Plutonium-239 und Tritium zur Herstellung von Atombomben im Vordergrund stand. Seit einiger Zeit wird die Produktionskapazität der Anlage auch für zivile Zwecke genutzt (Wiederaufarbeitung bestrahlter Leichtwasserreaktor-Brennelemente und Verarbeitung bestrahlter Neptunium-Targets zur Gewinnung von Plutonium-238).

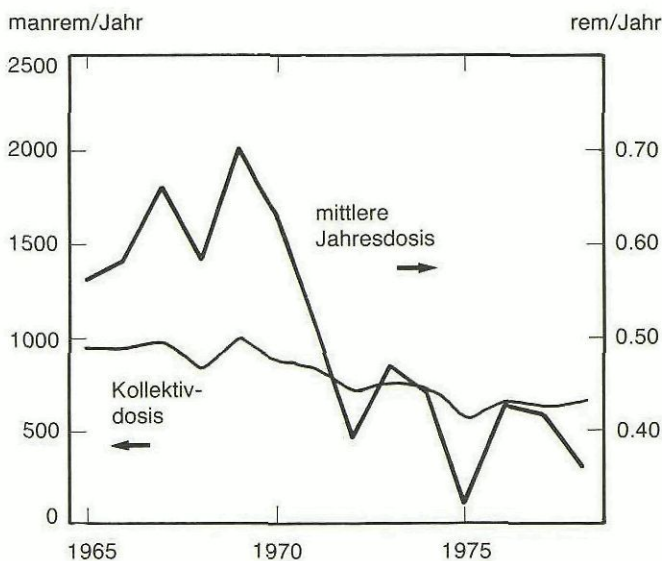


Bild 10:
Kollektivdosis und mittlere Jahresdosis beruflich strahlenexponierter Personen in der Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River^[20]

Bild 10 zeigt den Verlauf der mittleren Ganzkörper-Jahresdosis der Mitarbeiter der Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River^[20] in den Betriebsjahren 1965-1978.

Der höchste Wert wurde 1969 mit 0.70 rem/Jahr, der niedrigste 1975 mit 0.32 rem/Jahr (6.4 % des Dosisgrenzwertes) gemessen. Im Gegensatz zur WAK wurde diese Reduktion jedoch, wie der Verlauf von Kollektivdosiskurve und Individual-

dosiskurve anzeigt, teilweise durch eine Erhöhung der Zahl der Mitarbeiter erzielt.

Bild 11 gibt einen Überblick über die mittlere Ganzkörperdosis der Mitarbeiter in verschiedenen Arbeitsbereichen der Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River. Analog zu den Erfahrungen in anderen Wiederaufarbeitungsanlagen (z.B. der Idaho Chemical Processing Plant^[21] und französischen Wiederaufarbeitungsanlagen^[22]) zeigt sich, daß Labortechniker, Operateure in der Produktion und Strahlenschutztechniker die Betriebsgruppen in der Anlage darstellen, welche die höchste Dosis erhalten. Allerdings erhielten auch diese Mitarbeiter mit 0.75 rem/Jahr im Mittel der letzten fünf Jahre (1974-1978) nur 15 % des Dosisgrenzwertes von 5 rem/Jahr.

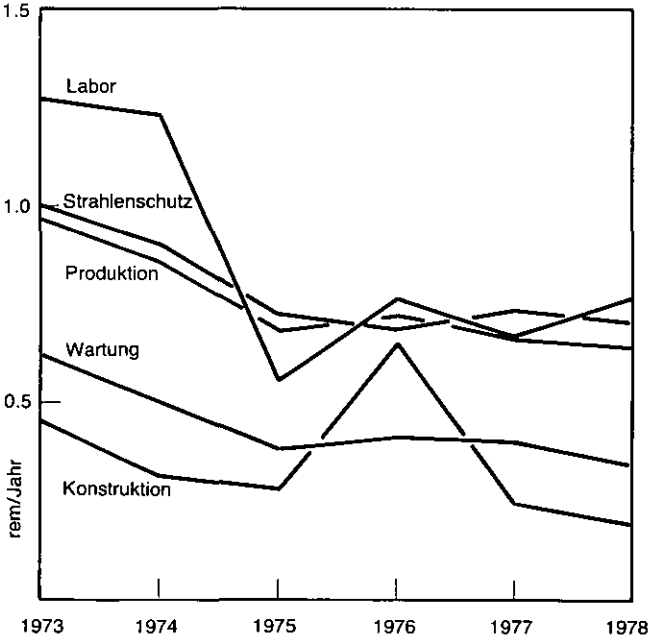


Bild 11: Mittlere Ganzkörper-Jahresdosis in verschiedenen Bereichen der Wiederaufarbeitungsanlage Savannah River^[20]

2.5 Endlagerung

Da bisher nirgendwo auf der Welt die Endlagerung bestrahlter Brennelemente oder konditionierter hochradioaktiver Spaltprodukte praktiziert wurde, liegen keinerlei praktische Erfahrungen über die Strahlenexposition des Personals derartiger Endlagerstätten vor.

Anhaltspunkte über die hier zu erwartenden Strahlenexpositionen können jedoch die bei der Strahlenschutzüberwachung des Einlagerungspersonals des deutschen Versuchsendlagers im Salzbergwerk Asse gewonnenen Erfahrungen geben.

In diesem Lager sind seit April 1967 bis zur vorläufigen Schließung des Lagers Ende 1978 ca. 120000 200- und 400-Liter-Fässer mit überwiegend schwach radioaktiven Abfällen (Radioaktivität je Faß kleiner als 5 Curie) eingelagert worden. Im letzten Einlagerungsjahr (1978) wurden rund 30000 Behälter zur Endlagerung angeliefert, von denen 51 % aus Kernforschungsanlagen, 35 % aus Kernkraftwerken und je 7 % aus der Industrie und den Landessammelstellen stammten. Das mit der Einlagerung befaßte Personal (8 Personen) erhielt 1978 eine Gesamtdosis (Kollektivdosis) von etwa 5.1 rem (mittlere Jahresdosis: 0.64 rem/Jahr), von denen etwa 40 % beim Stapeln der Fässer in den Lagerkammern aufgenommen wurden^[23]. Die mittlere Dosis, bezogen auf eine Verpackungseinheit, wurde zu 0.035 mrem/Faß (abgekippt) bzw. 0.64 mrem/VBA (VBA = verlorene Betonabschirmung mit Fässern, bei denen auch bei Einhaltung der maximal zulässigen Aktivität von 5 Curie je Faß die an der Oberfläche zulässige Dosisleistung überschritten wird) abgeschätzt.

Eine kürzlich publizierte Studie^[24] befaßte sich mit der Strahlenexposition des Personals eines Endlagers für nicht aufgearbeitete bestrahlte Brennelemente in einer beliebigen geologischen Formation. Der angenommene Abbrand der Brennelemente betrug 33 MWd/t Uran und die Kühlzeit 3 Jahre.

Die bei den Transport- und Umladevorgängen zum Strahlenschutz des Personals erforderlichen Abschirmungen wurden derart dimensioniert, daß je nach den notwendigen Handhabungszeiten Dosisleistungen zwischen 0.25 und 25 mrem/Stunde erreicht wurden. Unter diesen Voraussetzungen wurde errechnet, daß das Personal des Endlagers (14 Personen) bei einem Durchsatz von 3000 bestrahlten Druckwasserreaktor-Brennelementen (entsprechend der jährlichen Entladung von 50000 MW Kernkraftwerkskapazität) eine Kollektivdosis von 24 man-rem, also eine mittlere Jahresdosis von 1.7 rem/Jahr erhalten würde. Durch Verbesserung der Abschirmungen, insbesondere der Transportbehälter, sowie des Betriebsablaufes könnte diese Dosis sicherlich auf die Hälfte reduziert werden.

3. Strahlenexposition der Umwelt

3.1 Berechnung der Strahlenexposition

Nach § 45 der Strahlenschutzverordnung^[2] sind die technische Auslegung und der Betrieb kerntechnischer Anlagen so zu planen, daß die durch Ableitung radioaktiver Stoffe aus diesen Anlagen mit Luft oder Wasser bedingte Strahlenexposition so gering wie möglich gehalten wird (Minimal-Prinzip) und jeweils höchstens die Werte der Tabelle 4 erreicht.

Körperbereich	Dosisgrenzwert mrem/Jahr	
	Abluft	Abwasser
Ganzkörper, Knochenmark, Keimdrüsen	30	30
Schilddrüse	90	
Haut, Knochen	180	180
andere Organe	90	90

Tabelle 4 : Dosisgrenzwerte für die Umgebung von kerntechnischen Anlagen [2] (bestimmungsgemäßer Betrieb)

Die Strahlenexposition muß für die ungünstigsten Einwirkungsstellen unter Berücksichtigung sämtlicher relevanter Belastungspfade einschließlich der Ernährungsketten berechnet werden; die im einzelnen zu treffenden Annahmen und anzuwendenden Verfahren zur Ermittlung der Strahlenexposition bestimmt der Bundesinnenminister durch Rechtsverordnung. Diese „Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen und der Abluft oder in Oberflächengewässer“ ist als Richtlinie bekanntgegeben worden^[25].

Folgende Expositionswege werden berücksichtigt

Abluft:

- Direktbestrahlung aus der Abluftwolke
 - äußere γ-Strahlung
 - äußere β-Strahlung
- Direktbestrahlung aus Ablagerungen am Boden
- Inhalation aus der Abluftwolke
- Ablagerung aus der Luft auf Pflanzen
 - Milchkonsum
 - Fleischverzehr
 - Verzehr pflanzlicher Nahrungsmittel

Abwasser:

- Direktbestrahlung (Schwimmen, Bootfahren, Uferaufenthalt)
- Trinkwasser
- Fischverzehr
- Benutzung von Flußwasser zur Viehtränke
 - Milchkonsum
 - Fleischverzehr
- Benutzung von Flußwasser zur Beregnung
 - Milchkonsum
 - Fleischverzehr
 - Verzehr pflanzlicher Nahrungsmittel

Eine ausführliche Behandlung der radioökologischen Fragen ist in^[26,27] enthalten

3.2 Transport bestrahlter Brennelemente

Die in^[9-13] für den Strahlenschutz der Umwelt beim Transport bestrahlter Brennelemente festgelegten Anforderungen an Transportverpackungen sehen vor, daß die Äquivalentdosisleistung an der Oberfläche dieser Verpackungen 200 mrem/h und in 1 m Abstand 10 mrem/h nicht übersteigen darf. Für das bei Gorleben geplante nukleare Entsorgungszentrum rechnet man mit einem Transportaufkommen von 800 Brennelement-Transporten pro Jahr. Nimmt man an, daß jeder dieser Transporte eine Transportzeit von 24 h beansprucht, errechnet sich eine integrale Ortsdosis von 192 rem/a in 1 m Abstand. Da jedoch der überwiegende Teil dieser Transporte auf dem Bahnweg erfolgen wird, ist nicht damit zu rechnen, daß hierdurch ein relevanter Beitrag zur Bevölkerungsdosis zustande kommt. Unfälle beim Transport bestrahlter Brennelemente sind, mit Ausnahme eines ohne Strahlenexposition von Personal und Umwelt in den USA eingetretenen Straßentransportunfalls, bisher nicht vorgekommen. Die unter 2.2 beschriebene Konstruktion der Transportbehälter gewährleistet, wie auch der genannte Unfall erwiesen hat, daß auch bei denkbaren schweren Unfällen eine Strahlenexposition der Umwelt ausgeschlossen werden kann.

3.3 Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente

Bei der Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente in einem Wasserbecken kann eine Freisetzung von Spaltprodukten in das Beckenwasser nur aus Brennelementen mit Hüllrohrdefekten erfolgen. Der Anteil defekter Brennstäbe liegt erfahrungsgemäß zwischen 0.1 und 1 %.

Die β/γ -Aktivität im Lagerbeckenwasser ist überwiegend durch Sr-90 (etwa 36 %), Cs-134 und Cs-137 (je etwa 18 %) sowie Ru-106 (etwa 16 %) hervorgerufen. Sie wird durch Filterung und Einsatz von Ionenaustauschern ständig unterhalb festgelegter Konzentrationswerte gehalten.

Für die Strahlenexposition der Umwelt sind jedoch nur die flüchtigen Radionuklide H-3, Kr-85 und J-129 (bei nur wenig abgeklungenen Brennelementen auch J-131) von Bedeutung. Für das Brennelementzwischenlager Ahaus, welches für die Zwischenlagerung von 1500 t bestrahlter Brennelemente mit einer Mindestkühlzeit von einem Jahr eingerichtet werden soll, wurde die in Tabelle 5 angegebene Abgabe radioaktiver Stoffe mit Abluft und Abwasser abgeschätzt^[15].

Diese Abgaben führen bei Anwendung der in^[25] vorgeschriebenen Rechenverfahren zu der in Tabelle 6 angegebenen Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung des Zwischenlagers.

Nuklid	Aktivität Ci/Jahr	
	Abluft	Abwasser
Edelgase	600	--
J-131 + J-129	0.0001	--
Tritium (H-3)	< 50	0.1
sonstige Aktivierungs- und Spaltprodukte	0.043	0.0002

Tabelle 5: Abgabe radioaktiver Stoffe mit Abluft und Abwasser aus dem Brennelement-Zwischenlager (Naßlager) [15]

Körperbereich (Organ)	Strahlenexposition			
	Abluft		Abwasser	
	mrem/Jahr	% des Grenzwertes	mrem/Jahr	% des Grenzwertes
Ganzkörper	0.11	0.37	1.03	3.4
Haut	0.016	0.009	--	--
Knochen	0.074	0.04	0.70	0.39
Leber	0.15	0.17	--	--
Magen / Darm	0.011	0.01	0.065	0.07
Schilddrüse	0.091	0.10	0.036	0.04
Schilddrüse Kleinkind	0.016	0.02	--	--

Tabelle 6: Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung des Brennelement-Zwischenlagers (Naßlager) [15]

Diese Abschätzungen machen deutlich, daß ein Zwischenlager, wie es in Ahaus vorgesehen ist, bei bestimmungsgemäßem Betrieb keine relevante Gefährdung der Umgebung darstellt.

Bei einem Brennelement-Trockenlager, in welchem die Zwischenlagerung in den in 2.2. beschriebenen Behältern aus Sphäroguß vorgenommen wird^[16], läßt sich die Freisetzung von flüchtigen Radionukliden aus undichten Brennelementen durch Dichtungen an den Behältern (siehe Bild 6) verhindern. Da sich die externe Strahlenexposition durch Direktstrahlung außerhalb der Lagerhalle durch entsprechende Abschirmungsmaßnahmen auf beliebig kleine Werte reduzieren läßt, tritt bei Brennelement-Trockenlagern nach^[16] keine Strahlenexposition der Umwelt auf.

3.4 Wiederaufarbeitung und Abfallkonditionierung

3.4.1 Erfahrungen verschiedener Wiederaufarbeitungsanlagen

Die Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung einer Wiederaufarbeitungsanlage wird vor allem durch die Aktivitätsfreisetzung mit Abluft und Abwasser hervorgerufen. Durch technische Fortschritte bei der Entwicklung von Rückhaltetechniken^[6] lassen sich diese Freisetzungen schrittweise reduzieren, wie der Vergleich der jetzt stillgelegten älteren Anlagen in Windscale (Kapazität: 7 t U/Tag) und West Valley (Kapazität: 1 t U/Tag) mit dem geplanten Nuklearen Entsorgungszentrum (NEZ) erkennen läßt (siehe Tabelle 7)^[32]. Dies gilt insbesondere für die flüssigen Ableitungen radioaktiver Stoffe.

Die Zahlen machen deutlich, welche Anstrengungen unternommen werden, diese Ableitungen so gering wie möglich zu machen. Gegenüber der Anlage in Windscale, deren flüssige radioaktive Abfälle in großem Umfang in die Irische See eingeleitet wurden, soll die Rückhaltung um das 10⁶-fache verbessert werden. Auch gegenüber der Anlage in West Valley, bei welcher durch eine Reihe von Rückhaltebecken eine Abgabe-

verzögerung von 1-2 Monaten und damit eine Reduktion der Aktivitätsabgabe erzielt wurde, soll die Rückhaltung um mehr als das tausendfache verbessert werden.

Nuklid	Aktivität Ci/MW(e) · a					
	Windscale (27) (1972)		West Valley (27) (1966-1972)		NEZ (28,29) Planung 1977	
	Abluft	Abwasser	Abluft	Abwasser	Abluft	Abwasser
H-3	-	13.4	0.84	5.7	5.7	0.024
C-14	-	-	-	-	2.2 · 10 ⁻²	-
Co-60	-	-	-	-	-	1.0 · 10 ⁻⁶
Kr-85	400	-	340	-	16.5	-
Sr-89	-	0.43	3 · 10 ⁻⁶	0.003	-	-
Sr-90	4 · 10 ⁻⁵	6.1	6 · 10 ⁻⁵	0.013	2.2 · 10 ⁻⁵	2.9 · 10 ⁻⁶
Zr-95	-	10.2	-	-	-	-
Nb-95	-	9.4	-	-	-	-
Ru-103	-	0.46	-	-	-	-
Ru-106	-	12.2	4 · 10 ⁻⁵	0.075	6.0 · 10 ⁻⁶	1.2 · 10 ⁻⁶
J-129	2 · 10 ⁻⁶	-	4 · 10 ⁻⁶	0.00025	-	-
J-121	9 · 10 ⁻³	-	8 · 10 ⁻⁶	-	1.1 · 10 ⁻⁵	-
Cs-134	-	13.9	8 · 10 ⁻⁷	0.015	-	1.4 · 10 ⁻⁶
Cs-137	-	2.3	1 · 10 ⁻⁶	-	3.0 · 10 ⁻⁵	1.4 · 10 ⁻⁶
Ce-144	-	5.5	-	-	4.0 · 10 ⁻⁶	-
Pu-238	-	-	-	6.8 · 10 ⁶	-	-
Pu-239	-	0.62	-	7.4 · 10 ⁶	1.0 · 10 ⁻⁶	-

Tabelle 7: Aktivitätsfreisetzung mit Abluft und Abwasser verschiedener Wiederaufarbeitungsanlagen

3.4.2 Nukleares Entsorgungszentrum (NEZ) für die Bundesrepublik Deutschland

Das Nukleare Entsorgungszentrum mit einem jährlichen Durchsatz von 1400 t Uran wird aus den folgenden sieben Teilprojekten bestehen^[28,29,30]:

- 1. Brennelementlagerung,
- 2. Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Zwischenlagerung
- 3. Uranverarbeitung
- 4. Plutonium-Brennelementherstellung

Teilprojekt	1	2	3	4	5	6	7	gesamt
Nuklide								
Edelgase								
Kr-85	4000	820 000 ¹⁾	-	-	-	5	0,001	824 005
Halogene								
J-129 + J-131	<0,001	0,57 ²⁾	-	-	0,001	-	-	0,571
Tritium (H-3)	100	258 000 ³⁾	-	-	12 000	5 000	<0,001	285 203 ·
	-	<10 000			100	3		
α-Aerosole	-	<0,1	<0,03	<0,005	<0,003	-	-	0,138
β-Aerosole	-	<5	-	-	<0,4	<0,001	<0,002	6,473
		<1			<0,03			
		<0,04						
C-14	-	1 100	-	-	-	-	-	1 100
Sr-90	-	-	-	-	1,1	-	-	1,1
Ru-106	-	-	-	-	0,3	-	-	0,3
Cs-137	-	-	-	-	1,5	-	-	1,5
Ce-144	-	-	-	-	0,2	-	-	0,2

Tabelle 8: Ableitung radioaktiver Stoffe aus dem NEZ mit der Abluft aufgrund der DWK-Planung
(1 : Dekontaminationsfaktor (DF) = 20;
2 : DF = 100; 3 : DF = 4) [28]

- 5. Abfallendbehandlung
- 6. Abfallendlagerung
- 7. Übergeordnete Infrastruktur

Die aufgrund der vorgesehenen Auslegung der Rückhalteeinrichtungen für radioaktive Gase und Aerosole in der Abluft zu erwartenden Aktivitätsmengen sind in Tabelle 8 zusammengefaßt^[28]. Die hiernach für das ganze NEZ berechnete Gesamt-abgabe (letzte Spalte der Tabelle 8) wurde in einer gemeinsamen Empfehlung von Strahlenschutzkommission (SSK) und Reaktorsicherheitskommission (RSK) zum Teil erheblich herabgesetzt, so daß die Rückhalteeinrichtungen für radioaktive Gase und Aerosole entsprechend dem jeweiligen Stand von Wissenschaft und Technik projektbegleitend noch erheblich verbessert werden müssen^[29]. Die aufgrund der empfohlenen Ableitungen (Tabelle 9) an der jeweils ungünstigsten Einwirkungsstelle zu erwartenden Strahlenexpositionen sind in Tabelle 10 zusammengefaßt^[29]. Die Strahlenexposition durch die Einleitung radioaktiver Abwässer in die Elbe sind demgegenüber wesentlich geringer, wie aus Tabelle 10 hervorgeht.

Nuklid	Aktivität Ci/Jahr	
	Abluft	Abwasser
Kr-85	1 · 10 ⁶	--
J-129	0.2	--
Tritium (H-3)	2 · 10 ⁶	1200
C-14	1 · 10 ³	--
α-Aerosole	0.05	--
β-Aerosole	5	--
Spalt- und Aktivierungsprodukte	--	0.4 *

Tabelle 9: Abgabe radioaktiver Stoffe mit Abluft und Abwasser aus dem Nuklearen Entsorgungszentrum [29]
* Zusammensetzung : Sr-90 36%, Cs-134 und Cs-137 je 18%, Ru-106 16%, Co-60 12%.

Körperbereich (Organ)	Strahlenexposition			
	Abluft		Abwasser	
	mrem/Jahr	% des Grenzwertes	mrem/Jahr	% des Grenzwertes
Ganzkörper	4	13	2	6.5
Haut	5	2.8	--	--
Knochen	12	6.7	5	2.8
Schilddrüse	18	20	2	2.2
andere Organe	< 4	< 4.5	< 1	< 1.1

Tabelle 10: Strahlenexposition der Bevölkerung in der Umgebung des Nuklearen Entsorgungszentrums [29]

Die in dieser Tabelle angegebenen Dosiswerte wurden entsprechend^[2] und^[25] unter Berücksichtigung sämtlicher relevanter Expositionspfade, einschließlich der Ernährungsketten, für die kritische Bevölkerungsgruppe (Erwachsene) ermittelt. Die Strahlenexposition des Kleinkindes ist aufgrund der unterschiedlichen Ernährungsweise geringer.

3.5 Endlagerung

Weltweit existiert noch kein Endlager für konditionierte hochradioaktive Abfälle aus der Wiederaufarbeitung bestrahlter Brennelemente. Daher liegen auch noch keine Erfahrungen über die Strahlenexposition der Bevölkerung durch derartige Endlager vor.

Radio-nuklid	Herkunft	Aktivität Ci/Jahr	Strahlen-exposition mrem/Jahr	Organ
Tritium (H-3)	Verpressung	5000	$< 2.7 \cdot 10^{-3}$	Ganzkörper
	Schachanlage	< 3	$< 3.8 \cdot 10^{-6}$	Ganzkörper
Kr-85	Kryptonlager	5	$6.6 \cdot 10^{-6}$	Haut

Tabelle 11: Abgabe radioaktiver Stoffe aus dem Endlager des Nuklearen Entsorgungszentrums (NEZ) und Beitrag zur Strahlenexposition des NEZ [28]

Nuklid	Aktivität Ci/Jahr	Konzentration Ci/m ³	Strahlen-exposition mrem/Jahr	Organ
Tritium (H-3)	8.7	$5.5 \cdot 10^{-11}$	0.02	Ganzkörper
C-14	0.17	$1.1 \cdot 10^{-12}$	0.03	Knochen
J-129	$3.1 \cdot 10^{-6}$	$2.0 \cdot 10^{-17}$	10^{-3}	Schilddrüse

Tabelle 12: Abgabe radioaktiver Stoffe aus der Schachanlage Asse mit der Abluft im Jahre 1978, berechnete Aktivitätskonzentration an der ungünstigsten Stelle der Umzäunung und daraus resultierende Strahlenexposition [2,31]

Für das Endlager des Nuklearen Entsorgungszentrums (Teilprojekt 6) wurde die Emission der flüchtigen radioaktiven Spaltprodukte Tritium und Kr-85, welche insbesondere aus der Verpressung von tritiumhaltigen Abwässern in tiefe geologische Schichten und dem Krypton-Flaschenlager stammen, abgeschätzt^[28] (Tabelle 11). Die daraus resultierende Strahlenexposition ist vernachlässigbar klein gegenüber den durch die Teilprojekte 2 und 5 bedingten Strahlenexpositionen.

Anhaltspunkte für die Strahlenexposition in der Umgebung eines Endlagers können auch die Ergebnisse der Umgebungsüberwachung des Versuchsendlagers Asse für schwach- und mittelaktive Abfälle geben. In Tabelle 12 sind die radioaktiven Emissionen 1978 dieses Lagers und die daraus resultierenden Strahlenexpositionen zusammengefaßt. Wie diese Zahlen und die sonstigen Ergebnisse der Umgebungsüberwachung der Asse^[31] zeigen, stellt dieses Endlager keine Gefährdung der Umgebung dar.

3.6 Globale Auswirkungen der Entsorgung der Kernkraftwerke

Nach einer Untersuchung von UNSCEAR^[32] werden etwa 50 % der Kollektiv-Dosis der Weltbevölkerung aufgrund der nuklearen Stromerzeugung durch die globale Verteilung der langlebigen Radionuklide H-3, C-14, Kr-85 und J-129 hervorgerufen.

Absolut gesehen ist dieser Beitrag zur Zeit noch gering, wie aus einer EG-Studie (siehe Bild 12)^[33] hervorgeht. Zur Zeit beträgt die individuelle Dosis aufgrund dieser Verteilung etwa $2.3 \cdot 10^{-3}$ mrem/Jahr.

Die EG-Studie zeigt folgendes:

- die weltweite Strahlenexposition durch die friedliche Nutzung der Kernenergie bleibt heute und mit einem individuellen Dosisbeitrag von 0.04 mrem/Jahr auch noch im Jahre 2000 weit unter einem Hundertstel der natürlichen Strahlenexposition.
- eine weitere Reduzierung der globalen Strahlenexposition müßte bei der Rückhaltung von C-14 und Kr-85 ansetzen. Hier wären weltweit gemeinsame Maßnahmen wünschenswert.

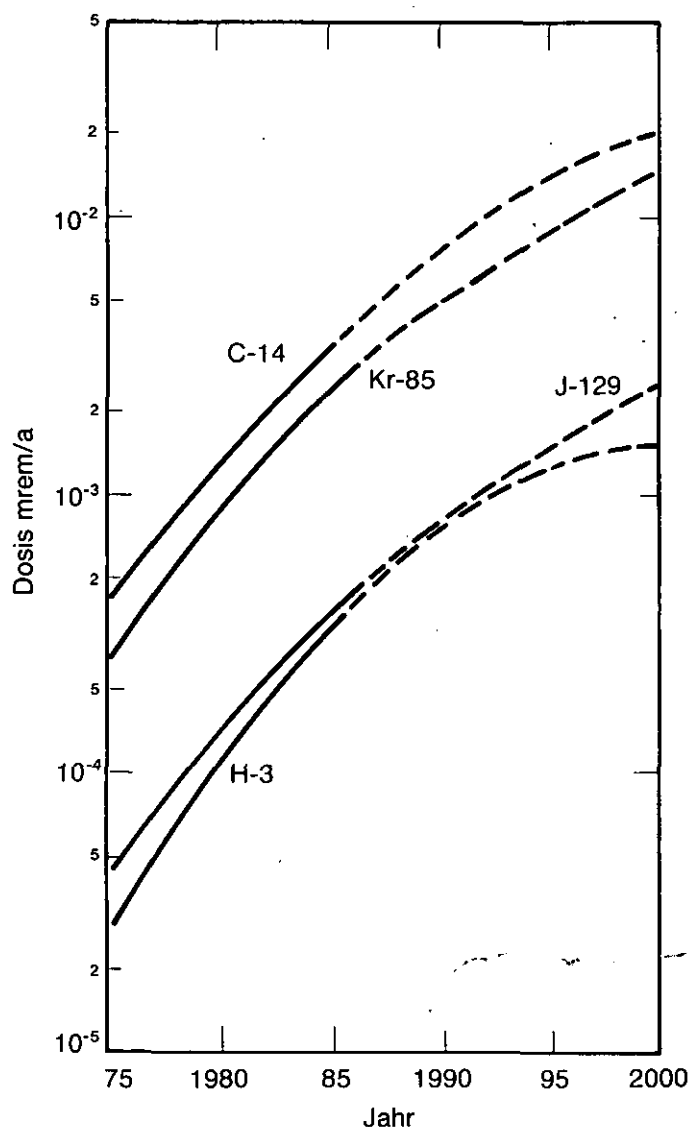


Bild 12:

Ganzkörper (H-3)-Gonaden (C-14, Kr-85)- und Schilddrüsen (J-129)-Dosis durch die weltweite Zirkulation der H-3-, C-14-, Kr-85- und J-129-Ableitungen infolge der Kernenergieprogramme der Welt^[33].

4. Störfälle

4.1 Erfahrungen mit Störfällen in Wiederaufarbeitungsanlagen

Eine Wiederaufarbeitungsanlage ist störfalltechnisch gesehen überwiegend eine chemische Anlage und erst in zweiter Linie eine kerntechnische Anlage. Daher stehen, der Zahl der Ereignisse nach, die chemischen Störfälle ursächlich im Vordergrund, während bei den Auswirkungen die radiologischen Folgen überwiegen können. Bei den bekannt gewordenen bedeutsamen Störfällen^[34] (Zircalloybrand in West Valley (1971), Verpuffung in Windscale (1973), chemischer Zerknall eines Verdampfers in Savannah River (1953), Explosion und Brand von Ionenaustauschern (4 Fälle zwischen 1962 und 1964) und Leckagen von Stahltanks mit hochaktiven salpetersauren Lösungen) hat es zwar häufig erhebliche Sachschäden und Betriebsausfälle, aber weder Todesopfer noch schwere Verletzungen gegeben.

Bei der kritischen Beurteilung dieser Störfälle muß man zudem den damaligen Stand der Technik und die seinerzeit gültigen Sicherheitsnormen in Betracht ziehen. Dies gilt insbesondere auch für die andere wichtige Klasse von Störfällen in Wiederaufarbeitungsanlagen, die kritischen Exkursionen. Nach^[34] fanden im Zeitraum von 1945 bis 1965 27 Kritikalitäts-Zwischenfälle statt, von denen sich 6 in Wiederaufarbeitungsanlagen ereigneten. Seitdem wurde nur noch ein Zwischenfall (1970 in Windscale) bekannt^[35]. Abgesehen von diesem letzten Fall ereigneten sich alle anderen Fälle, bei denen 3 Todesopfer und 17 Fälle hoher Strahlenbelastung zu beklagen waren, in der „Steinzeit“ der Wiederaufarbeitung. Sie waren überwiegend die Folge von konstruktiven und administrativen Mängeln sowie Fehleinschätzungen aus Unkenntnis, die unter dem heutigen Konzept der Kritikalitätssicherheit (geometrisch sichere Behälter und Rohrleitungen, Mengen- und Konzentrationsbegrenzungen) und den heutigen Sicherheitsnormen undenkbar sind^[36-41].

4.2 Störfallvorsorge

Bei der Planung kerntechnischer Anlagen sind auch Störfälle, die an sich möglich, wenn auch unwahrscheinlich sind, zu behandeln. In der Strahlenschutzverordnung (§ 28,3) sind Dosisgrenzwerte festgesetzt worden, die bei Eintritt dieses Störfalles, des sogenannten Auslegungstörfalles (Größter anzunehmender Unfall – GaU) eingehalten werden müssen^[2]. Der Auslegungstörfall ist durch die Strahlenschutzverordnung wie folgt definiert: „Ereignisablauf, bei dessen Eintreten der Betrieb der Anlage aus sicherheitstechnischen Gründen nicht fortgeführt werden kann und für den die Anlage ausgelegt ist“.

Die der Planung einer Wiederaufarbeitungsanlage zugrunde zu legenden Dosisgrenzwerte sind in Tabelle 13 zusammengefaßt. Aufgabe der Störfallplanung bei der Entsorgung der Kernkraftwerke ist es, durch vorbeugende Maßnahmen die Eintrittswahrscheinlichkeiten für Störfälle zu verringern und durch Maßnahmen zur Beherrschung von Störfällen die Auswirkungen zu reduzieren^[42]. Hierbei sind Einwirkungen von außen (insbesondere Flugzeugabsturz, Erdbeben und Explosionen) und anlagenspezifische Einwirkungen zu berücksichtigen. Die Planung des Nuklearen Entsorgungszentrums sieht den Schutz aller Teilprojekte mit hohem Aktivitätsinventar (TP 1, TP 2, TP 4 und TP 5) gegen alle möglichen Einwirkungen von außen vor^[28,29]. Die wichtigsten betriebsinternen Störfälle in den einzelnen Teilprojekten, gegen welche Vorsorge getroffen wird, sind:

- TP 1: Ausfall der Beckenkühlung
- TP 2: Explosionen aufgrund chemischer Reaktionen (z.B. Knallgas-Explosion)
- TP 3: Brand in der Uran-Verarbeitung
- TP 4: Kritische Exkursionen
- TP 5: Explosionen (z.B. Denitrator-Zerknall)
- TP 6: Wassereintrich in das Grubengebäude

Körperbereich	Dosisgrenzwert rem
	Abluft und Abwasser
Ganzkörper, Knochenmark, Keimdrüsen	5
Schilddrüse	15
Haut, Knochen	30
andere Organe	15

Tabelle 13: Störfall-Dosisgrenzwerte für die Umgebung von kerntechnischen Anlagen [2]

5. Schlußbetrachtung

Die friedliche Nutzung der Kernenergie setzt eine zuverlässige und sichere Entsorgung voraus. Hierbei steht die Einhaltung der unter 1. definierten Ziele des Strahlenschutzes

- jede unnötige Strahlenexposition zu vermeiden
- jede unvermeidbare Strahlenexposition von Mensch und Umwelt so gering wie möglich zu halten

vor wirtschaftlichen Gesichtspunkten im Vordergrund.

Vorstehende Ausführungen haben erkennen lassen, daß der Strahlenschutz in den vergangenen zehn Jahren große Fortschritte in dieser Richtung gemacht hat.

Die berufliche Strahlenexposition bei der Entsorgung konnte im Mittel auf unter 10 % des Dosisgrenzwertes herabgesetzt werden. Ein Beispiel dafür bietet die kürzlich publizierte Dosisstatistik für die USA^[43].

Bereich des Brennstoff-Kreislaufes	Beschäftigte			Kollektivdosis man-rem	Mittlere Dosis rem/Jahr
	gesamt	mit Dosis	Dosis >5 rem		
Uranerzaufbereitung (1975)	437	404	0	166	0.41
Konversion	623	565	0	131	0.23
Brennelementherstellung und Wiederaufarbeit.	12349	5896	0	1432	0.24
Kernkraftwerksbetrieb	76121	45978	103	31806	0.69
Summe	89530	50843	103	33535	0.66

Tabelle 14: Berufliche Strahlenexposition 1978 der in Anlagen des Brennstoff-Kreislaufes der USA beschäftigten Personen [43]

Tabelle 14 läßt erkennen, daß zur Zeit der weitaus größte Anteil der beruflichen Strahlenexposition (95 %) dem Betrieb der Kernkraftwerke zugeordnet werden kann, wo auch die mittlere Jahresdosis mit 0.69 rem/Jahr am höchsten ist. Dies war 1978 auch der einzige Bereich, in dem Dosisüberschreitungen vorkamen. Mit zunehmender Wiederaufarbeitungskapazität wird der Anteil der Wiederaufarbeitung an der Kollektivdosis zunehmen, jedoch besteht aufgrund der Erfahrungen bestehender Anlagen^[19-22] Anlaß zu der Annahme, daß die mittlere Dosis des Personals kleiner als 10 % des Dosisgrenzwertes bleiben wird.

Die kollektive Strahlenexposition der Bevölkerung der USA aufgrund der friedlichen Nutzung der Kernenergie ist nach^[32] von der gleichen Größenordnung wie die berufliche Strahlenexposition, wenn man die Keimdrüsendosis zum Vergleich heranzieht, und um das dreifache größer, wenn mit der Knochenmarkdosis verglichen wird (Tabelle 15). Insgesamt gesehen, erhält die Bevölkerung der USA nach diesen Abschätzungen zur Zeit durch Kernenergienutzung eine Dosis von etwa 78000 man-rem (Keimdrüsen) bzw. 147000 man-rem (Knochenmark). Dies entspricht etwa der Kollektivdosis, welche die Bevölkerung der USA durch die kosmische Strahlung beim Luftverkehr erhält. Nach^[44,45] beträgt diese Dosis etwa 100000 man-rem pro Jahr.

Mit den Risikofaktoren nach^[1,32,46] von 10^{-4} rem^{-1} für das Risiko, an Krebs zu sterben, und $1.85 \cdot 10^{-4} \text{ rem}^{-1}$ für das genetische Strahlenrisiko läßt sich abschätzen, daß in der Bevölkerung der USA aufgrund der friedlichen Nutzung der Kernenergie im Jahre 1978 jeweils etwa 15 zusätzliche Krebstode bzw. zusätzliche genetische Schäden auftreten werden. Diese Effekte würden nicht feststellbar sein, da sie wesentlich kleiner sind als die Schwankungen des natürlichen Auftretens von

Bereich des Brennstoff-Kreislaufes	Kollektivdosis man-rem		
	Keimdrüsen	Knochenmark	Schilddrüse
Lokaler und regionaler Beitrag (1)			
Uranbergbau- und Aufbereitung	24.3	492	24.3
Brennelementherstellung	-	0.12	0.3
Kernkraftwerksbetrieb	7 500	7 500	10 800
Transporte	120	120	120
Wiederaufarbeitung	3 960	7 590	4 050
Summe (1)	11 604	15 702	14 995
Globaler Beitrag (2)			
H-3	3 000	3 000	3 000
C-14	27 000	90 000	27 000
Kr-85	2 700	4 500	2 700
J-129	-	-	15 000
Summe (2)	32 700	97 500	47 700
Summen (1) + (2)	44.304	113 202	62 695

Tabelle 15: Strahlenexposition 1978 der Bevölkerung der USA aufgrund der friedlichen Nutzung der Kernenergie (ohne berufliche Strahlenexposition) [32]

somatischen und genetischen Schäden. Beispielsweise sterben jährlich mehr als 500 000 US-Bürger an Krebserkrankungen, von denen etwa 2 400 durch die natürliche Strahlenexposition^[47,48] hervorgerufen sein können.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß das Risiko der Bevölkerung bei der Entsorgung der Kernkraftwerke kalkulierbar und nach heutigem Wissensstand vernachlässigbar klein ist gegenüber dem natürlichen Strahlenrisiko.

6. Literatur

- [1] ICRP 26: „Recommendations of the International Commission on Radiological Protection“, 1977
- [2] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung) vom 13. Okt. 1976, BGB 2, Teil I, 1976, Nr. 125
- [3] SAUERMANN, P.F.: „Strahlenschutz durch Abschirmung“, Verlag Karl Thieme, München, 1976
- [4] BELL, M.J.: „Origen – The ORNL Isotope Generation and Depletion Code“, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4628, May 1973
- [5] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung, DIN 25420, Teil 1 „Errichtung von Heißen Zellen aus Beton; Grundsätze“, z.Zt. noch Entwurf
- [6] SAUERMANN, P.F.: „Abschirmung der schnellen Neutronen von Zyklotrons für die medizinisch-biologische Forschung“, Jül-751-PC, April 1971
- [7] HERMANN, G. et al.: „Emissionen und Betriebserfahrungen mit Rückhalte-einrichtungen bei Wiederaufarbeitungsanlagen“, Reaktortagung, Mannheim 1977
- [8] RINGEL, H., BARNERT-WIEMER, H., ZIMMER, E.: „Rückhaltung der radioaktiven Spaltprodukte“, Jül-Conf-33, Dez. 1979 (dieser Bericht)
- [9] IAEA: „Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials“, 1973, Revised Edition
- [10] Verordnung über die Änderung und Ergänzung der Anlage I des Internationalen Übereinkommens über den Eisenbahnfrachtverkehr, BGB 2, Teil II, März 1967, Anlage C
- [11] Gesetz zu dem Europäischen Übereinkommen vom 30. September 1957 über die internationale Beförderung gefährlicher Güter auf der Straße (ADR), August 1969, BGB 2, Teil II
- [12] Verordnung über gefährliche Seefrachtgüter, Fassung vom 21. Dezember 1973, BGB 2, Teil I
- [13] IATA-Regulation Relating to the Carriage of Restricted Articles by Air, Montreal, Canada, 1967
- [14] CHRIST, R.: „Strahlenschutz beim Transport bestrahlter Brennelemente“, 10. Jahrestagung Fachverband für Strahlenschutz, Gießen, Juni 1976
- [15] DWK Hannover: „Brennelementzwischenlager Ahaus“, Kurzbeschreibung, Januar 1978
- [16] DWK Hannover: „Transportbehälterlager – Die trockene Lagerung von ausgedienten Brennelementen, 1979
- [17] GWK Karlsruhe: „Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe“, 1976
- [18] WENZEL, U.: „Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen“, Jül-Conf-33, Dez. 1979 (dieser Bericht)
- [19] SCHÜLLER, W.: „Radiation Exposure of the WAK Staff during Seven Years of Operation“, IAEA Symposium on „Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [20] HAYES, G. et al.: „Radiation Exposures in Reprocessing Facilities at the Savannah River Plant“, IAEA Symposium on „Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [21] CEBE, J.J., LOVELL, J.R., WENZEL, D.R.: „Radiation Exposure at the Idaho Chemical Processing Plant“, IAEA Symposium on „Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [22] BEAU, P.G., SCHEIDHAUER, J.: „Exposition des Travailleurs dans Certaines Installations du Cycle du Combustible Nucleaire“, IAEA Symposium on „Occupational Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [23] STIPPLER, R., KLEIMANN, H.: „Strahlenschutz und Umgebungsüberwachung bei der Lagerung von radioaktiven Abfällen in einem Salzbergwerk“, 7. IRPA-Regionalkongreß und 13. FS-Jahrestagung, Köln, Oktober 1979
- [24] ISAKARI, H.H. et al.: „Occupational Exposure Estimate for Spent Fuel Geologic Storage Operation“, IAEA Symposium on „Occupational Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [25] Der Bundesminister des Innern: „Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässern“, (Richtlinie zu § 45 StrlSchV), Gemeinsames Ministerialblatt der Bundesministerien, Bonn, August 1979
- [26] GEISS, H., PASCHKE, M.: „Die Emission von Radionukliden und ihr Verhalten in der Nahrungskette und im menschlichen Körper“, Seminar „Perspektiven der Kernenergie“, Jül-Conf-32, Dez. 1979
- [27] SCHÜTTELKOPF, H.: „Radiologische Aspekte der Entsorgung“, in: Chemie der Nuklearen Entsorgung, Thieme-Taschenbuch Band 65, München, Januar 1978
- [28] Bericht über das in der Bundesrepublik Deutschland geplante Entsorgungszentrum für ausgediente Brennelemente aus Kernkraftwerken, DWK, Hannover, Sept. 1977
- [29] Bericht der Bundesregierung zur Situation der Entsorgung der Kernkraftwerke in der Bundesrepublik Deutschland (Entsorgungsbericht), 8. Wahlperiode, Drucksache 8/1281, 30.11.1977

- [30] MERZ, E.: „Die Entsorgung der Kernkraftwerke“, Jül-Conf-33, Dez. 1979 (dieser Bericht)
- [31] STIPPLER, R., KLEIMANN, H.: „Strahlenschutz und Umgebungsüberwachung im Bereich der Schachthanlage Asse“, Jahresbericht 1978, GSF, Institut für Tief Lagerung, Oktober 1979
- [32] UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1977, Report: „Sources and Effects of Ionizing Radiation“, United Nations, New York, 1977
- [33] KELLY, G.N. et al.: „The Predicted Radiation Exposure of the Population of the European Community Resulting from Discharges of Krypton-85, Tritium, Carbon-14 und Iodine-129 from the Nuclear Industry to the Year 2000“, Doc. V/2676/75, Commission of the European Communities, Luxemburg, 1975
- [34] SCHULZ, E.H.: „Vorkommnisse und Strahlenunfälle in kerntechnischen Anlagen“, Verlag Karl Thieme, München, August 1965
- [35] BÖHMER, V.: „Störfallerfahrungen mit Wiederaufarbeitungsanlagen“, Fortbildungsseminar „Sicherheit von Wiederaufarbeitungsanlagen“, KTG, Köln 1978
- [36] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 1: „Grundsätze der Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen“, Januar 1970
- [37] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 2: „Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen; Kritikalitätsdaten für Uran-235-Metall-Leichtwasser-Mischungen“, August 1975
- [38] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 3: „Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen; Kritikalitätsdaten für Plutonium-239-Metall-Leichtwasser-Mischungen“, August 1975
- [39] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 4: „Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen; Kritikalitätsdaten für Uran-235-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen“, Januar 1977
- [40] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 5: „Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen; Kritikalitätsdaten für Plutonium-239-Dioxid-Leichtwasser-Mischungen“, Januar 1977
- [41] Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung: DIN 25403, Teil 6: „Kritikalitätssicherheit bei der Herstellung und Handhabung von Kernbrennstoffen; Kritikalitätsdaten für Plutonium-239-Nitrat-Leichtwasser-Mischungen“, Januar 1977
- [42] REPKE, W., BUSCHMANN, W.: „Sicherheitstechnische Maßnahmen zur Verhinderung bzw. Beherrschung von Störfällen im Entsorgungszentrum“, Fortbildungsseminar „Sicherheit von Wiederaufarbeitungsanlagen“, KTG, Köln, 1978
- [43] BROOKS, B.G.: „Occupational Radiation Exposures at NRC-Licensed Facilities“, IAEA Symposium on „Occupational Radiation Exposure in Nuclear Fuel Cycle Facilities“, Los Angeles, June 1979
- [44] SMITH, W.S.: „Radiological Hazard to Air Commerce“, Report FAA-AEQ-78-04, US Department of Transportation, Washington, DC., February 1978
- [45] SCHAEFER, H.J.: „Das Höhenprofil der kosmischen Strahlendosis“, in: „Die natürliche Strahlenexposition des Menschen“, Verlag Georg Thieme, Stuttgart, 1974
- [46] BEIR-Report III, Advisory Committee on the Biological Effects of Ionising Radiations, National Academy of Sciences, National Research Council, Washington, 1979
- [47] AURAND, K. et al.: „Die natürliche Strahlenexposition des Menschen – Grundlage zur Beurteilung des Strahlenrisikos“, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1974
- [48] FELDMANN, A.: „Kernenergie und Strahlenrisiko“, Jül-Conf-17, 4. überarbeitete Auflage, September 1979